

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК
ЖУРНАЛ
ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ
И ТЕОРЕТИЧЕСКОЙ ФИЗИКИ

ОСНОВАН В МАРТЕ 1873 ГОДА

ТОМ 160, ВЫПУСК 2 (8)

ВЫХОДИТ 12 РАЗ В ГОД

АВГУСТ 2021

МОСКВА

РАН

ЖУРНАЛ ИЗДАЕТСЯ ПОД РУКОВОДСТВОМ ОТДЕЛЕНИЯ ФИЗИЧЕСКИХ НАУК РАН

СОДЕРЖАНИЕ

АТОМЫ, МОЛЕКУЛЫ, ОПТИКА

- Динамика временной эволюции возбуждения квантового осциллятора электромагнитными импульсами Астапенко В. А., Розми Ф. Б., Сахно Е. В. 155
- Использование модельного уравнения Больцмана для анализа влияния энергии связи на развитие каскада выбитых атомов в твердом теле Метелкин Е. В., Лебедева М. В. 167
- Кооперативное излучение как субординированный случайный процесс Башаров А. М., Грубилко А. И. 175

ЯДРА, ЧАСТИЦЫ, ПОЛЯ, ГРАВИТАЦИЯ И АСТРОФИЗИКА

- Как обнаружить легчайший глюбол Вронский М. А., Косяков Б. П., Попов Е. Ю. 188

ТВЕРДЫЕ ТЕЛА И ЖИДКОСТИ

- Разработка дизайна сверхмногопериодных излучающих структур терагерцевого диапазона, выращенных методом молекулярно-пучковой эпитаксии Герчиков Л. Г., Дашков А. С., Горай Л. И., Буравлёв А. Д. 197
- Изучение диффузионных свойств кислорода в TiO_2 Бакулин А. В., Чумакова Л. С., Кулькова С. Е. 206

© Российская академия наук, 2021

© Редколлегия журнала ЖЭТФ (составитель), 2021

Энергетические изменения релаксационной природы в высокоэнтропийных объемных аморфных сплавах	
..... Макаров А. С., Гончарова Е. В., Цзиао Ц. Ч., Кобелев Н. П., Хоник В. А.	213

**ПОРЯДОК, БЕСПОРЯДОК И ФАЗОВЫЕ ПЕРЕХОДЫ
В КОНДЕНСИРОВАННЫХ СРЕДАХ**

Бистабильность фотоэлектрического эффекта в пленках сегнетоэлектрического фуллерен-фталоцианинового композиционного материала	
..... Палто С. П., Лазарев В. В., Гейвандов А. Р., Юдин С. Г.	223
Обобщенная модель Изинга в магнитном поле	
..... Цуварев Е. С., Кассан-Оглы Ф. А.	232
Энергии образования вакансий кубической фазы магнетита в рамках DFT+U	
..... Шутикова М. И., Стегайлов В. В.	249

ЭЛЕКТРОННЫЕ СВОЙСТВА ТВЕРДЫХ ТЕЛ

Поперечный термомагнитный эффект в двумерном электронном газе поверхностной полупроводниковой сверхрешетки	
..... Перов А. А., Пикунов П. В.	275

**СТАТИСТИЧЕСКАЯ И НЕЛИНЕЙНАЯ ФИЗИКА,
ФИЗИКА «МЯГКОЙ» МАТЕРИИ**

Нелинейное поглощение лазерного излучения при релятивистском плазменном резонансе в неоднородной плазме	
..... Метельский И. И., Ковалев В. Ф., Быченков В. Ю.	283

ДИНАМИКА ВРЕМЕННОЙ ЭВОЛЮЦИИ ВОЗБУЖДЕНИЯ КВАНТОВОГО ОСЦИЛЛЯТОРА ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫМИ ИМПУЛЬСАМИ

В. А. Астапенко^{a}, Ф. Б. Розми^{a,b,c**}, Е. В. Сазно^a*

^a *Московский физико-технический институт (национальный исследовательский университет)
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

^b *Sorbonne University, Faculty of Sciences and Engineering
75252, Paris, France*

^c *Ecole Polytechnique, LULI Laboratory
91128, Palaiseau, France*

Поступила в редакцию 11 марта 2021 г.,
после переработки 19 марта 2021 г.
Принята к публикации 22 марта 2021 г.

Теоретически исследуется динамика временной эволюции возбуждения квантового осциллятора электромагнитными импульсами при произвольном значении амплитуды поля в импульсе. Рассматривается гармонический осциллятор без затухания и возбуждение между стационарными состояниями. Общая формула для возбуждения квантовых состояний как функции времени выведена в терминах мгновенной энергии ассоциированного классического осциллятора в поле электромагнитного импульса. С помощью полученного выражения детально исследована зависимость вероятности возбуждения квантового осциллятора от времени вне рамок теории возмущений для различных параметров импульса, включая полное возбуждение из основного состояния, возбуждение из возбужденных состояний и спектры возбуждения.

DOI: 10.31857/S0044451021080010

1. ВВЕДЕНИЕ

Квантовый гармонический осциллятор является уникальной физической системой, поскольку динамику его временной эволюции можно аналитически описать при взаимодействии с возмущением произвольной величины вне рамок теории возмущений [1, 2]. Развитие методов генерации ультракоротких лазерных импульсов (УКИ) [3, 4] делает актуальным рассмотрение взаимодействия таких импульсов с различными мишенями [5–10], включая колебательные системы [11, 12]. Так, в предыдущей работе авторов [12] рассматривалось возбуждение квантового осциллятора за все время действия УКИ в зависимости от длительности импульса и частотной отстройки его несущей частоты от собственной частоты осциллятора при произвольном значении амплитуды электрического поля. Аналитически и чис-

ленно были проанализированы эволюция спектров возбуждения и зависимость его вероятности от длительности импульса при увеличении амплитуды поля.

В последнее время успешно развиваются экспериментальные методы наблюдения фотопроцессов, индуцируемых УКИ, в реальном времени [13, 14]. Данному вопросу посвящены, например, работы [15, 16], в которых наблюдались возбуждение резонанса Фано в атоме гелия и рождение фотоэлектрона с субфемтосекундным разрешением. В связи с этим становится актуальным адекватное теоретическое описание таких явлений.

Настоящая работа посвящена детальному теоретическому анализу возбуждения квантового осциллятора под действием УКИ в зависимости от времени для различных параметров возбуждающего импульса вне рамок теории возмущений.

2. ОСНОВНЫЕ ФОРМУЛЫ

Зависящая от времени вероятность $W_{mn}(t)$ возбуждения квантового гармонического осциллятора

* E-mail: astval@mail.ru

** F. B. Rosmej

(КО) под действием электромагнитного импульса (ЭМИ) для перехода $n \rightarrow m$, $m > n$, определяется формулой (см. Приложение А)

$$W_{mn}(t) = \frac{n!}{m!} \nu(t)^{m-n} \exp(-\nu(t)) |L_n^{m-n}(\nu(t))|^2. \quad (1)$$

Здесь $L_n^k(\nu(t))$ — обобщенный полином Лагерра.

Выражение (1) было получено Швингером [1] в теории квантованных полей для вероятностей переходов между состояниями с различным числом фотонов, индуцированных заданным электронным током. С помощью метода канонического преобразования Хусими получил выражение для вероятности возбуждения квантового осциллятора через полиномы Шарля [2].

В настоящей статье мы рассматриваем осциллятор без затухания. Из (1) видно, что зависимость вероятности возбуждения от времени определяется безразмерной функцией $\nu(t)$. Как показано в Приложении А, функция $\nu(t)$ равна

$$\nu(t) = \frac{\varepsilon_{clas}(t)}{\hbar\omega_0}, \quad (2)$$

где $\varepsilon_{clas}(t)$ — энергия, поглощаемая классическим осциллятором, ассоциированным с квантовым, под действием ЭМИ в момент времени t . Под ассоциированным классическим осциллятором подразумевается осциллятор с одинаковыми значениями параметров: собственной частотой ω_0 , массой M и зарядом q .

Отметим, что параметр ν можно интерпретировать как среднее число квантов КО, возбужденных под действием ЭМИ.

Выражение для $\varepsilon_{clas}(t)$ имеет следующий вид (см. Приложение В):

$$\varepsilon_{clas}(t) = \frac{q^2}{2M} \left| \int_{-\infty}^t E(t') \exp(i\omega_0 t') \right|^2. \quad (3)$$

Здесь $E(t)$ — напряженность электрического поля в ЭМИ как функция времени. В данной статье положено, что $E(t \rightarrow \pm\infty) \rightarrow 0$.

Из формулы (3) следует, что мгновенная энергия классического осциллятора определяется неполным преобразованием Фурье (НПФ) от напряженности электрического поля в импульсе на собственной частоте осциллятора.

Далее для определенности рассматривается ЭМИ с гауссовой огибающей:

$$E(t, \omega, \tau) = E_0 \exp\left(-\frac{t^2}{2\tau^2}\right) \cos(\omega t), \quad (4)$$

где ω, τ — несущая частота и длительность импульса, E_0 — амплитуда напряженности электрического поля импульса.

Для гауссова импульса (4) НПФ можно представить в виде [17]

$$FG(t, \omega', \omega, \tau) = FGw(t, \omega' + \omega, \tau) + FGw(t, \omega' - \omega, \tau), \quad (5)$$

$$FGw(t, \omega, \tau) = \sqrt{\frac{\pi}{8}} \tau E_0 \times \exp\left(-\frac{\omega^2 \tau^2}{2}\right) \left\{ \operatorname{erf}\left(\frac{t}{\sqrt{2}\tau} - i\frac{\omega\tau}{\sqrt{2}}\right) + 1 \right\}. \quad (6)$$

Здесь $\operatorname{erf}(z)$ — функция ошибки, ω' — текущая частота неполного преобразования Фурье.

Отметим, что в пределе больших времен $t \rightarrow \infty$ фурье-образ гауссова импульса дается выражением

$$E(\omega, \omega', \tau) = \sqrt{\frac{\pi}{2}} E_0 \tau \left\{ \exp\left(-\frac{(\omega' - \omega)^2 \tau^2}{2}\right) + \exp\left(-\frac{(\omega' + \omega)^2 \tau^2}{2}\right) \right\}. \quad (7)$$

Для околорезонансных частот $|\omega - \omega_0| \ll \omega_0$ и времен $t \gg \tau$ формула (3) в рассматриваемом случае принимает вид

$$\varepsilon_{clas}(t \gg \tau) \cong \frac{\pi}{4} \frac{q^2 E_0^2 \tau^2}{M} \exp\left\{-\frac{(\omega - \omega_0)^2 \tau^2}{2}\right\}. \quad (8)$$

Подставляя (8) в (2) и (1), приходим к выражению для асимптотической (для $t \gg \tau$) вероятности возбуждения КО, которая подробно исследована в статье [12].

На рис. 1 показаны временные зависимости энергии, поглощенной классическим осциллятором (2), нормированной на квант энергии ($\hbar\omega_0$), для различных относительных отстроек несущей частоты импульса от собственной частоты осциллятора $\delta = (\omega - \omega_0)/\omega_0$. Видно, что с увеличением отстройки δ появляется максимум в зависимости $\nu(t)$, а величина этой функции уменьшается.

Еще одна особенность — наличие осцилляций в зависимости поглощенной энергии от времени. Частота этих колебаний равна собственной частоте квантового осциллятора. Математически наличие данных осцилляций следует из формул (5), (6), определяющих неполное преобразование Фурье напряженности электрического поля в импульсе. Как видно из этих формул, осцилляции возникают из-за интерференции вкладов в НПФ от положительной и

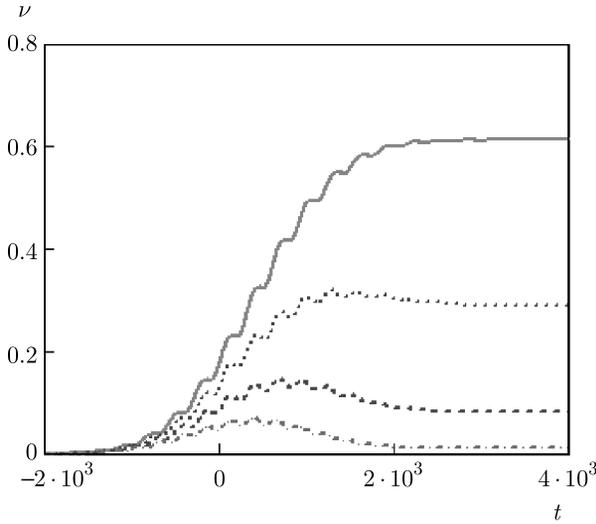


Рис. 1. Временные зависимости нормированной энергии ассоциированного классического осциллятора (2) для различных спектральных отстроек: сплошная кривая — $\delta = 0.05$, пунктирная кривая — $\delta = 0.1$, штриховая кривая — $\delta = 0.15$, штрихпунктирная кривая — $\delta = 0.2$; $\tau = 10^3$ ат. ед., $E_0 = 10^{-2}$ ат. ед., $q = 1$ ат. ед., $M = 10^4$ ат. ед., $\omega_0 = 0.01$ ат. ед.

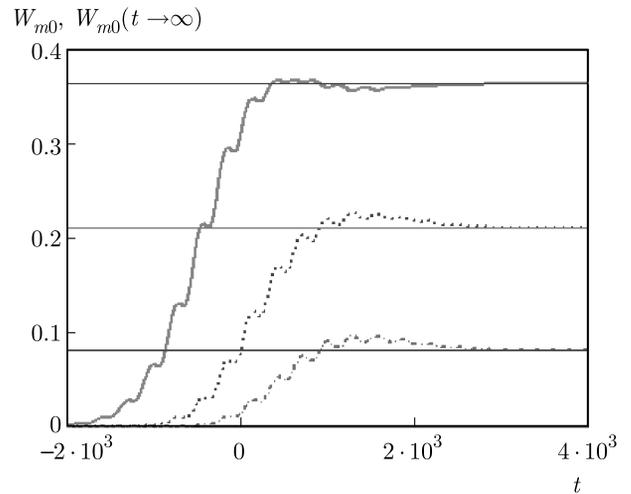


Рис. 2. Временные зависимости вероятности возбуждения КО из основного состояния для $E_0 = 2 \cdot 10^{-2}$ и разных возбужденных состояний: жирная сплошная кривая — $m = 1$, пунктирная кривая — $m = 2$, штрихпунктирная кривая — $m = 3$, тонкие сплошные линии соответствуют асимптотическим значениям вероятности, вычисленным с использованием (8), (9); относительная спектральная отстройка $\delta = 0.1$

отрицательной частотных составляющих напряженности поля в ЭМИ. Таким образом, они имеют другую природу, нежели колебания Раби.

Для возбуждения КО из основного состояния ($n = 0 \rightarrow m$) выражение (1) упрощается к виду

$$W_{m0}(t) = \frac{\nu(t)^m}{m!} \exp(-\nu(t)). \quad (9)$$

Легко получить из (9) формулу для полной вероятности возбуждения КО из основного состояния:

$$W_{tot}(t) = \sum_{m=1}^{\infty} W_{m0}(t) = 1 - \exp(-\nu(t)). \quad (10)$$

Как следует из рис. 1, функция $W_{tot}(t)$ по-разному зависит от времени при различных значениях параметра δ .

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Результаты расчетов временной зависимости вероятности возбуждения КО по полученным формулам представлены на рисунках ниже для $\omega_0 = 0.01$, $q = 1$, $M = 10^4$ и различных значений E_0 , τ и δ . Здесь и ниже используются атомные единицы $e = m_e = \hbar = 1$.

На рис. 2-4 показаны зависимости вероятности возбуждения КО от времени из основного состояния

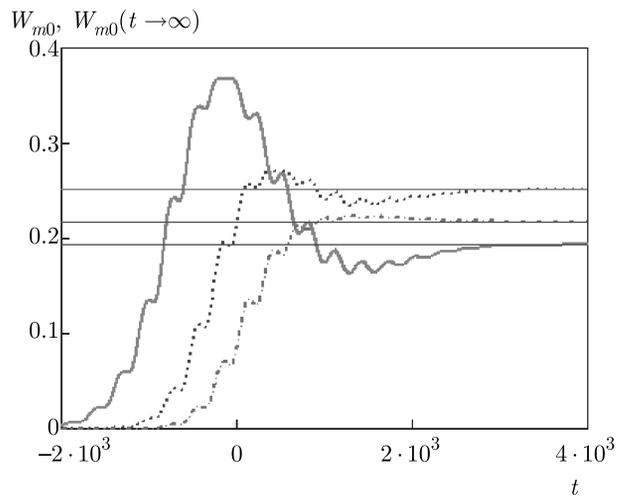


Рис. 3. Временные зависимости вероятности возбуждения КО из основного состояния для $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$ и разных возбужденных состояний: жирная сплошная кривая — $m = 1$, пунктирная кривая — $m = 2$, штрихпунктирная кривая — $m = 3$, тонкие сплошные линии соответствуют асимптотическим значениям вероятности, вычисленным с использованием (8), (9); относительная спектральная отстройка $\delta = 0.1$

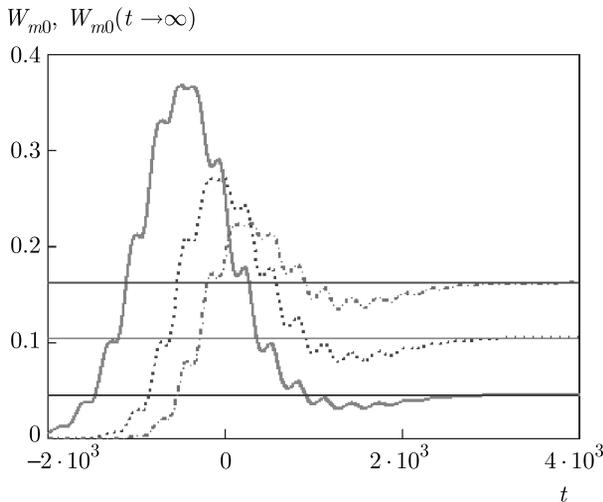


Рис. 4. Временные зависимости вероятности возбуждения КО из основного состояния для $E_0 = 4 \cdot 10^{-2}$ и разных возбужденных состояний: жирная сплошная кривая — $m = 1$, пунктирная кривая — $m = 2$, штрихпунктирная кривая — $m = 3$, тонкие сплошные линии соответствуют асимптотическим значениям вероятности, вычисленным с использованием (8), (9); относительная спектральная отстройка $\delta = 0.1$

в ближайшие возбужденные состояния ($m = 1, 2, 3$) для различных значений амплитуды электрического поля в ЭМИ. Асимптотические значения вероятности возбуждения на больших временах, рассчитанные по формулам (2), (8), (В.6), здесь показаны тонкими сплошными линиями.

Из рис. 2–4 следует, что с увеличением амплитуды напряженности электрического поля зависимость $W_{m0}(t)$ из монотонно возрастающей функции превращается в функцию с максимумом, амплитуда которого практически не меняется с увеличением E_0 , а положение слабо смещается в область малых времен.

Осцилляции кривых, изображенных на рис. 2–4, возникают из-за осцилляций во временной зависимости поглощенной энергии (см. рис. 1) вследствие указанного выше интерференционного эффекта.

На рис. 5–7 представлены зависимости вероятности возбуждения перехода $0 \rightarrow 2$ от времени для различных длительностей импульса и различных спектральных отстроек δ .

Из рис. 5 видно, что при малой длительности импульса вероятность возбуждения увеличивается практически монотонно, достигая значения насыщения при временах $t \geq 2\tau$. В этом случае значение стационарной вероятности возбуждения уменьшается с увеличением спектральной отстройки δ . Такая

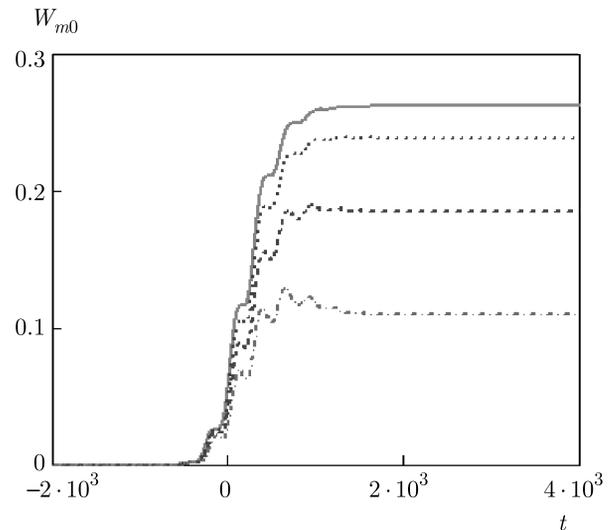


Рис. 5. Временные зависимости вероятности возбуждения КО на переходе $0 \rightarrow 2$ для $\tau = 500$ и различных отстроек: сплошная кривая — $\delta = 0.05$, пунктирная кривая — $\delta = 0.1$, штриховая кривая — $\delta = 0.15$, штрихпунктирная кривая — $\delta = 0.2$; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$

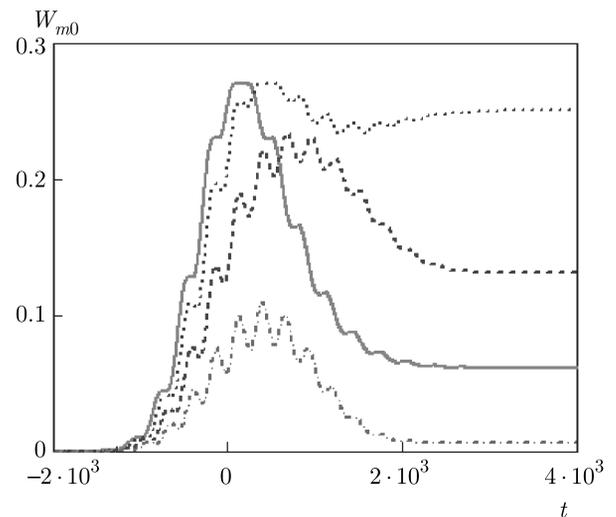


Рис. 6. Временные зависимости вероятности возбуждения КО на переходе $0 \rightarrow 2$ для $\tau = 1000$ и различных отстроек: сплошная кривая — $\delta = 0.05$, пунктирная кривая — $\delta = 0.1$, штриховая кривая — $\delta = 0.15$, штрихпунктирная кривая — $\delta = 0.2$; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$

ситуация характерна для относительно небольших величин ν , когда $\exp(-\nu) \approx 1$, и можно пользоваться теорией возмущений. С увеличением длительности импульса роль нелинейности во взаимодействии ЭМИ с КО возрастает и зависимость вероятности возбуждения от времени становится более сложной, как видно из рис. 6, 7. Одной из характерных особен-

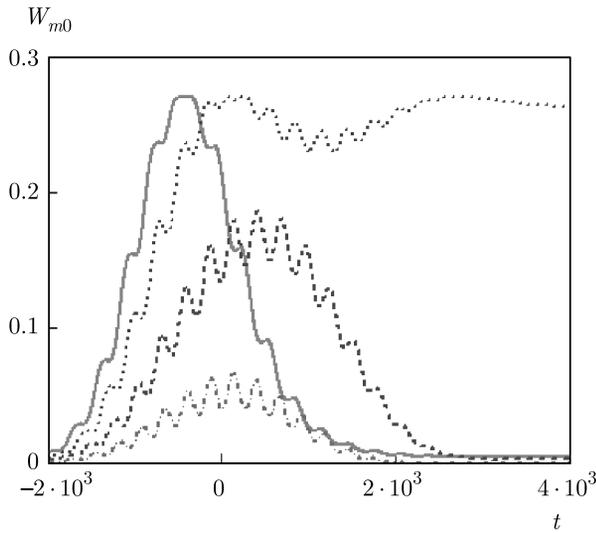


Рис. 7. Временные зависимости вероятности возбуждения КО на переходе $0 \rightarrow 2$ для $\tau = 1500$ и различных отстроек: сплошная кривая — $\delta = 0.05$, пунктирная кривая — $\delta = 0.1$, штриховая кривая — $\delta = 0.15$, штрихпунктирная кривая — $\delta = 0.2$; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$

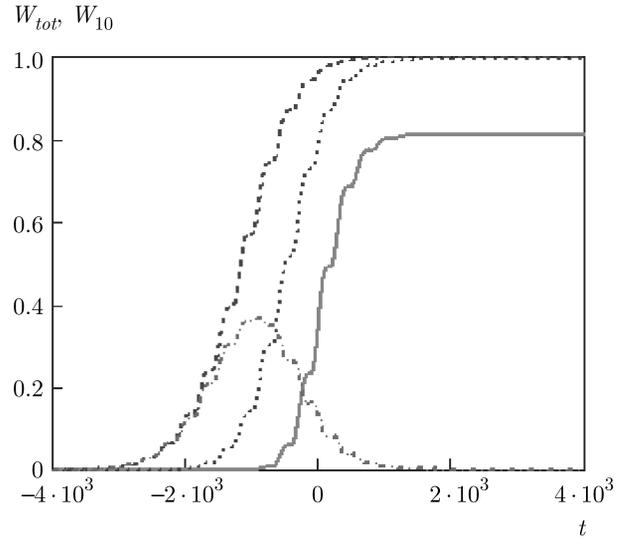


Рис. 9. Полная вероятность возбуждения КО из основного состояния как функция времени для $\delta = 0.05$ и различных длительностей импульса: сплошная кривая — $\tau = 500$, пунктирная кривая — $\tau = 1000$, штриховая кривая — $\tau = 1500$; штрихпунктирная кривая описывает возбуждение перехода $0 \rightarrow 1$; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$

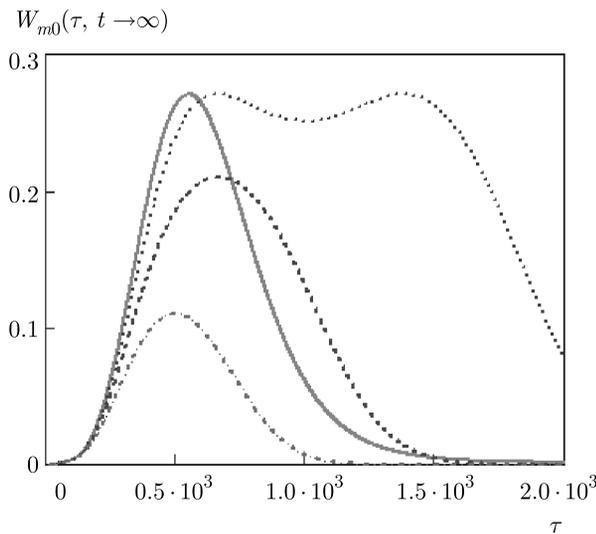


Рис. 8. Асимптотическая вероятность возбуждения КО перехода $0 \rightarrow 2$ как функция длительности импульса для различных значений относительной отстройки: сплошная кривая — $\delta = 0.05$, пунктирная кривая — $\delta = 0.1$, штриховая кривая — $\delta = 0.15$, штрихпунктирная кривая — $\delta = 0.2$; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$

ностей временной зависимости в случае более длинных импульсов является то, что со временем вероятность возбуждения импульсами с большей отстройкой частоты становится больше, чем для импульсов с меньшим δ .

Асимптотические значения вероятности возбуждения также существенно зависят от величины отстройки и длительности импульса. Так, например, в случае, показанном на рис. 5–7, максимальное асимптотическое значение вероятности возбуждения соответствует спектральной отстройке $\delta = 0.1$. Это согласуется с графиками, представленными на рис. 8, где показаны зависимости асимптотической вероятности возбуждения от длительности импульса для различных спектральных отстроек, рассчитанные по формулам (2), (8), (В.6). Отметим, что асимптотическая вероятность возбуждения подробно исследовалась в работе [12], где, в частности, аналитически была рассмотрена зависимость вероятности возбуждения от длительности импульса для различных значений других параметров импульса (см. рис. 4 из цитируемой статьи).

Полная вероятность возбуждения КО из основного состояния как функция времени показана на рис. 9–11 для различных значений δ и τ ; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$. На этих же рисунках представлены временные зависимости вероятности возбуждения перехода $0 \rightarrow 1$ для длительности импульса $\tau = 1500$ и различных значений отстройки δ .

Из рисунков следует, что в случае короткого импульса временная зависимость полной вероятности возбуждения КО практически не меняется с увеличением спектральной отстройки. Напротив, для

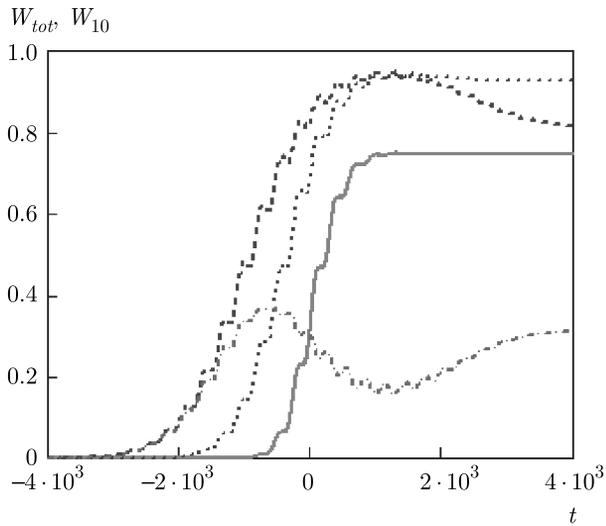


Рис. 10. Полная вероятность возбуждения КО из основного состояния как функция времени для $\delta = 0.1$ и различных длительностей импульса: сплошная кривая — $\tau = 500$, пунктирная кривая — $\tau = 1000$, штриховая кривая — $\tau = 1500$; штрихпунктирная кривая описывает возбуждение перехода $0 \rightarrow 1$; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$

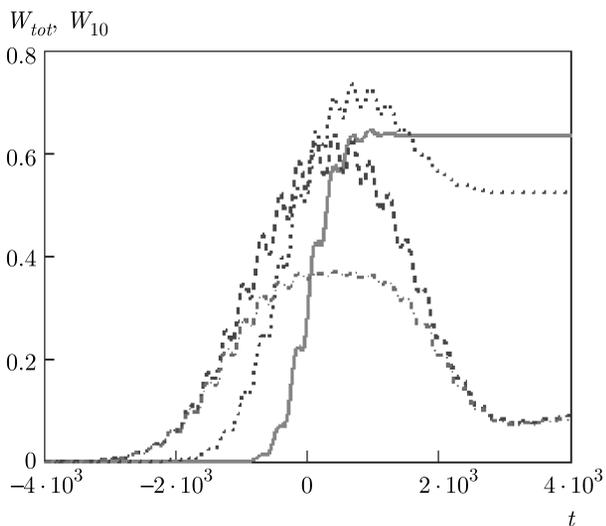


Рис. 11. Полная вероятность возбуждения КО из основного состояния как функция времени для $\delta = 0.15$ и различных длительностей импульса: сплошная кривая — $\tau = 500$, пунктирная кривая — $\tau = 1000$, штриховая кривая — $\tau = 1500$; штрихпунктирная кривая описывает возбуждение перехода $0 \rightarrow 1$; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$

длинного импульса форма кривой существенно меняется, что хорошо видно на рис. 11.

Еще один вывод, следующий из рис. 9–11, заключается в том, что зависимость полной вероятности возбуждения КО от времени приближается к своему

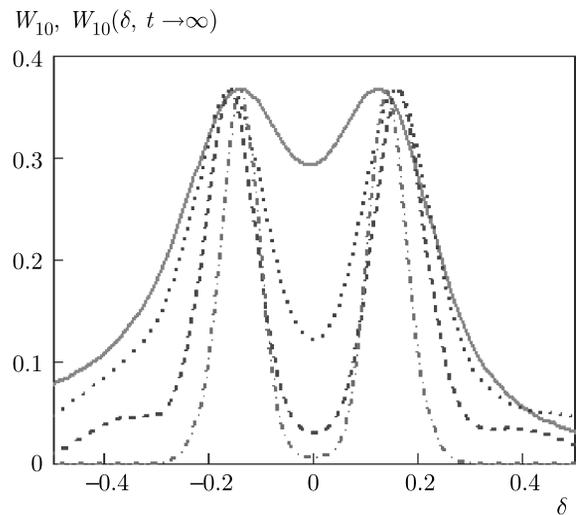


Рис. 12. Временная эволюция спектра вероятностей возбуждения для перехода $0 \rightarrow 1$: сплошная кривая — $t = 10$, пунктирная кривая — $t = 500$, штриховая кривая — $t = 10^3$; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$, $\tau = 1000$; штрихпунктирная кривая показывает асимптотический спектр для $t \rightarrow \infty$

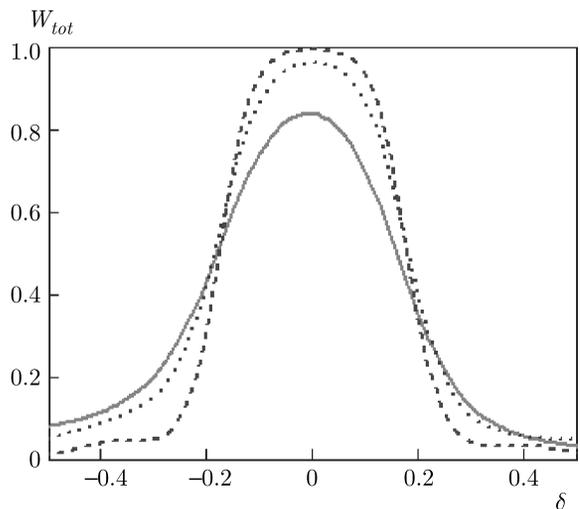


Рис. 13. Временная эволюция спектра вероятностей возбуждения для полного возбуждения КО из основного состояния: сплошная кривая — $t = 10$, пунктирная кривая — $t = 500$, штриховая кривая — $t = 10^3$; $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$, $\tau = 1000$

аналогу для возбуждения перехода $0 \rightarrow 1$ с увеличением спектральной отстройки δ .

Временная эволюция спектра возбуждения КО для перехода $0 \rightarrow 1$ показана на рис. 12, на рис. 13 — для полного возбуждения из основного состояния. Под спектром возбуждения понимается зависимость вероятности возбуждения от относительной отстройки частоты $\delta = (\omega - \omega_0)/\omega_0$.

Как следует из рис. 12, спектр возбуждения перехода $0 \rightarrow 1$ для данной амплитуды поля имеет провал в центре при $\delta = 0$. Кроме того, спектр имеет слабо выраженную асимметрию, которая исчезает в пределе больших времен. Расчет показывает, что при меньших значениях амплитуды поля указанный провал отсутствует. Спектр возбуждения в этом случае представляет собой колоколообразную кривую с максимумом при $\delta = 0$. Спектр вероятностей полного возбуждения КО имеет один максимум при $\delta = 0$ для всех значений напряженности поля в импульсе. С увеличением времени форма этого максимума изменяется от колоколообразной до столообразной, как это видно на рис. 13.

Описанные особенности связаны с наличием множителя $\exp(-\nu)$ в выражении для вероятности возбуждения КО. Физически появление спектрального провала при переходе между стационарными состояниями соответствует насыщению этого перехода под действием ЭМИ.

Рассмотрим теперь переходы из возбужденных состояний КО по формулам (A.26), (A.30), которые следуют из выражения (1):

$$W_{mn}(t) = n!m!\nu(t)^{m+n} \exp(-\nu(t)) \times \left| \sum_{k=0}^{\min(n,m)} \frac{(-1)^k \nu(t)^k}{k!(m-k)!(n-k)!} \right|^2. \quad (11)$$

Следует отметить, что в отличие от (1) выражение (11) представляет результат в явном виде как функцию параметра ν и квантовых чисел стационарных состояний (m, n) .

Результаты расчетов вероятности возбуждения переходов $n \rightarrow 3$ ($n = 0, 1, 2$) для разных значений амплитуды ЭМИ E_0 представлены на рис. 14–16.

Видно, что зависимость вероятности возбуждения от времени наиболее сильно изменяется при переходе между ближайшими энергетическими уровнями (переход $2 \rightarrow 3$), так что появляется новый максимум, а зависимость вероятности возбуждения перехода от времени $0 \rightarrow 3$ изменяется относительно слабо. Отметим, что для переходов из основного состояния КО при достаточно сильных полях существует только один максимум вероятности возбуждения как функции времени (см. рис. 3, 4).

Временная эволюция спектра возбуждения перехода $1 \rightarrow 3$ для разных значений амплитуды ЭМИ показана на рис. 17–19.

Из рисунков видно, что с увеличением амплитуды поля спектр возбуждения становится все более сложным. Вместо одного максимума при малых

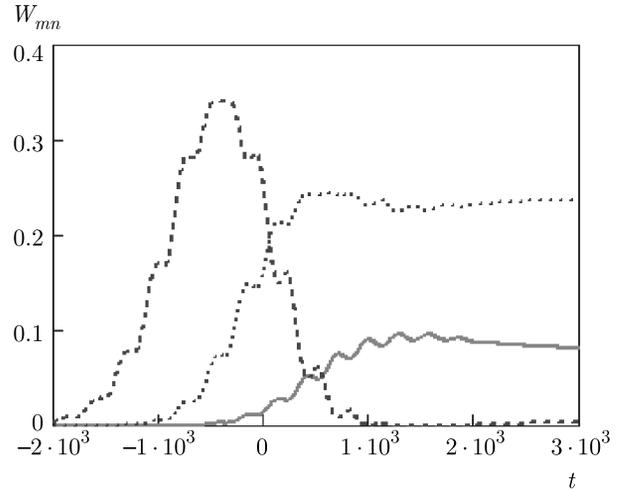


Рис. 14. Зависимости вероятности возбуждения КО под действием ЭМИ от времени с амплитудой поля $E_0 = 2 \cdot 10^{-2}$ для переходов $n \rightarrow 3$: сплошная кривая — $0 \rightarrow 3$, пунктирная кривая — $1 \rightarrow 3$, штриховая кривая — $2 \rightarrow 3$; $\delta = 0.1$; $\tau = 10^3$

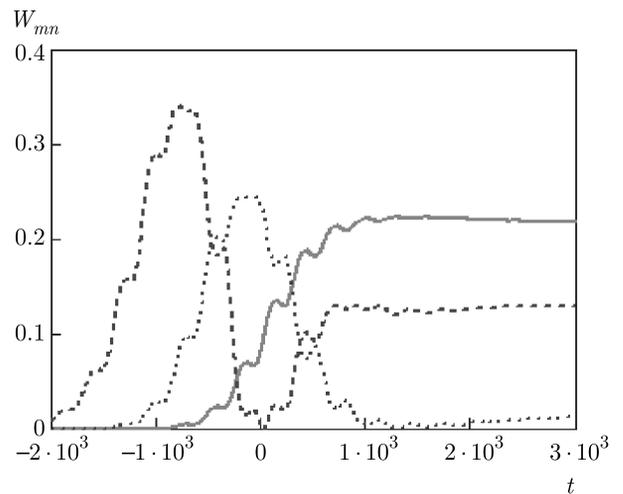


Рис. 15. Зависимости вероятности возбуждения КО под действием ЭМИ от времени с амплитудой поля $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$ для переходов $n \rightarrow 3$: сплошная кривая — $0 \rightarrow 3$, пунктирная кривая — $1 \rightarrow 3$, штриховая кривая — $2 \rightarrow 3$; $\delta = 0.1$; $\tau = 10^3$

значениях амплитуды (рис. 17) появляются два максимума с провалом в центре (рис. 18), который при дальнейшем увеличении амплитуды превращается в максимум (рис. 19). Таким образом, с увеличением поля спектр возбуждения расширяется, а количество максимумов и минимумов увеличивается. Существенно, что при больших амплитудах поля зависимость спектра возбуждения со временем меняется сильнее.

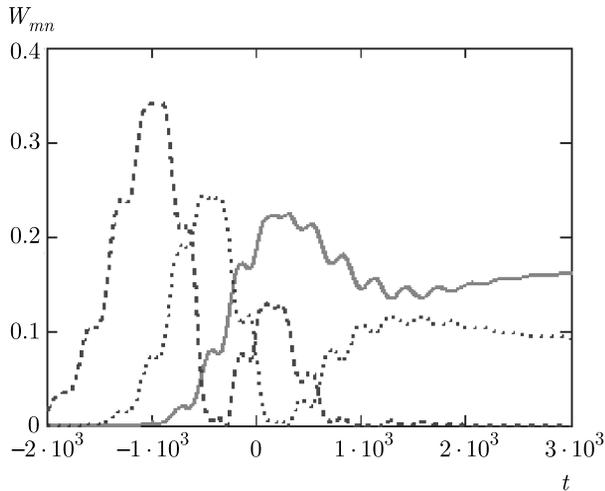


Рис. 16. Зависимости вероятности возбуждения КО под действием ЭМИ от времени с амплитудой поля $E_0 = 4 \cdot 10^{-2}$ для переходов $n \rightarrow 3$: сплошная кривая — $0 \rightarrow 3$, пунктирная кривая — $1 \rightarrow 3$, штриховая кривая — $2 \rightarrow 3$; $\delta = 0.1$; $\tau = 10^3$

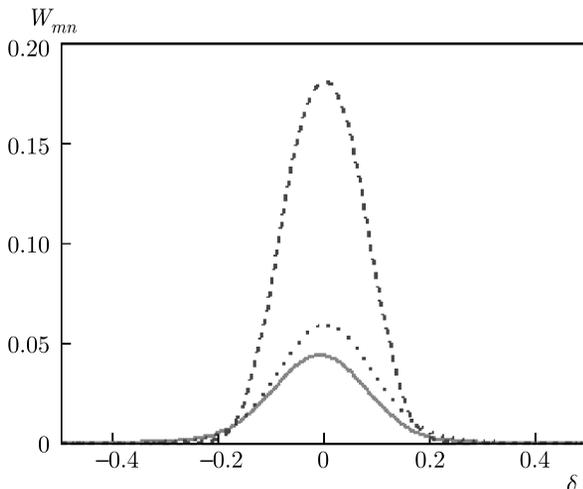


Рис. 17. Временная эволюция спектра возбуждения перехода $1 \rightarrow 3$ в КО для амплитуды поля $E_0 = 10^{-2}$: сплошная кривая — $t = 10$, пунктирная кривая — $t = 10^2$, штриховая кривая — $t = 10^3$; длительность импульса $\tau = 10^3$

Примечательно, что значение вероятности возбуждения в максимумах остается неизменным при достаточно большой амплитуде поля и равно для данного перехода одному и тому же значению: $W_{max}(1 \rightarrow 3) \approx 0.245$.

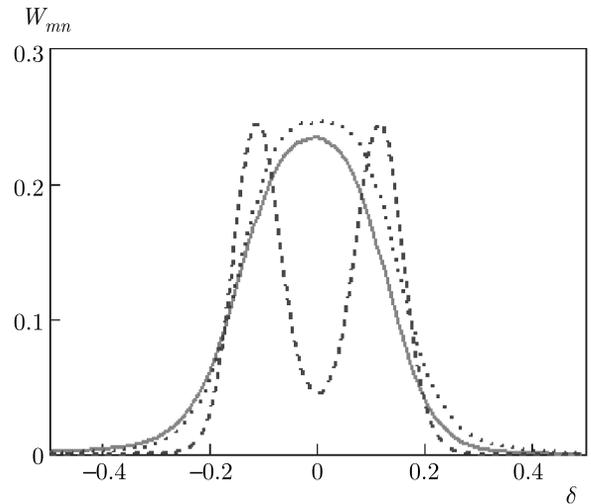


Рис. 18. Временная эволюция спектра возбуждения перехода $1 \rightarrow 3$ в КО для амплитуды поля $E_0 = 2 \cdot 10^{-2}$: сплошная кривая — $t = 10$, пунктирная кривая — $t = 10^2$, штриховая кривая — $t = 10^3$; длительность импульса $\tau = 10^3$

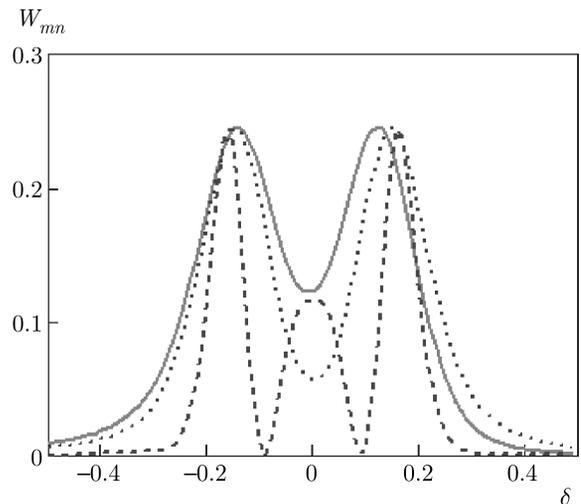


Рис. 19. Временная эволюция спектра возбуждения перехода $1 \rightarrow 3$ в КО для амплитуды поля $E_0 = 3 \cdot 10^{-2}$: сплошная кривая — $t = 10$, пунктирная кривая — $t = 10^2$, штриховая кривая — $t = 10^3$; длительность импульса $\tau = 10^3$

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В статье динамика временной эволюции возбуждения КО под действием ЭМИ детально численно исследована вне рамок теории возмущений. Установлено, что эта зависимость определяется энергией ассоциированного классического осциллятора в данный момент времени.

Показано, что поведение функции $W_{mn}(t)$ сильно зависит от параметров ЭМИ: отстройки несущей

частоты от собственной частоты КО, длительности импульса и амплитуды напряженности электрического поля. Так, с увеличением значений указанных параметров вероятность возбуждения КО, монотонно возрастающая со временем, превращается в функцию, имеющую огибающую с максимумом и осцилляции с частотой, равной собственной частоте КО. Амплитуда этих осцилляций увеличивается с увеличением длительности импульса τ и частотной отстройки несущей частоты от собственной частоты δ . Данные осцилляции имеют иную природу, чем осцилляции Раби. Они возникают в результате интерференции вкладов в процесс положительной и отрицательной частотных составляющих напряженности электрического поля в импульсе.

Полная вероятность возбуждения КО в случае коротких импульсов остается монотонно возрастающей функцией времени при увеличении отстройки δ , а для длинных импульсов вероятность возбуждения достигает максимума с ростом δ .

Исследована временная эволюция спектров возбуждения КО для различных амплитуд электрического поля ЭМИ. В частности, показано, что с увеличением амплитуды поля у спектральной кривой вместо одного максимума при $\delta = 0$ появляются боковые максимумы, положение и форма которых со временем меняются. В случае возбуждения из возбужденного состояния центральный спектральный минимум со временем превращается в максимум (рис. 19). Спектр полного возбуждения КО из основного состояния в пределе сильных полей описывается столообразной кривой, ширина которой со временем уменьшается.

Получено выражение возбуждения КО перехода $n \rightarrow m$ (11) с явной зависимостью от квантовых чисел стационарных состояний (m, n) . В частности, из этого выражения следует, что вероятности взаимно обратных переходов в квантовом осцилляторе под действием ЭМИ равны между собой в приближении заданного поля.

В заключение отметим, что в данной статье расчеты проведены для гауссовой огибающей импульса и параметров КО, характерных для молекулярных колебаний. В рентгеновском диапазоне длин волн обычно используются лазеры на свободных электронах, импульсы которых состоят из субимпульсов [18]. Тогда нужно пользоваться общей формулой (3) для расчета энергии, поглощаемой классическим осциллятором, ассоциированным с КО. В случае применимости теории возмущений и гауссовых субимпульсов можно получить аналитическое выражение для вероятности в пределе больших

времен [19]. Заметим также, что в последние годы появились предложения по генерации одиночных импульсов лазера на свободных электронах [20], а также аттосекундных одноцикловых импульсов [21].

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке Московского физико-технического института в рамках Программы 5-топ-100.

5. ПРИЛОЖЕНИЕ А

Полагаем, что до возбуждения ($t \rightarrow -\infty$) осциллятор находился в n -м стационарном состоянии с волновой функцией (без временного фактора) [22]

$$\psi_n^{(0)}(x) = \left(\frac{M\omega}{\pi\hbar}\right)^{1/4} \frac{1}{\sqrt{2^n n!}} \times \exp\left(-\frac{M\omega}{2\hbar}x^2\right) H_n\left(x\sqrt{\frac{M\omega}{\hbar}}\right), \quad (\text{A.1})$$

где H_n — полиномы Эрмита. Введем безразмерную переменную

$$\tilde{x} = x\sqrt{\frac{M\omega}{\hbar}} \quad (\text{A.2})$$

и безразмерную функцию

$$\tilde{\psi} = \left(\frac{\hbar}{M\omega}\right)^{1/4} \psi. \quad (\text{A.3})$$

Под действием ЭМИ исходная функция преобразуется как $\tilde{\psi}_n^{(0)}(x) \rightarrow \tilde{\psi}_n(x, t)$. Тогда для вероятности перехода между стационарными состояниями квантового осциллятора $n \rightarrow m$ получаем (в момент времени t)

$$W_{mn}(t) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} d\tilde{x} \tilde{\psi}_n(\tilde{x}, t) \tilde{\psi}_m^{(0)}(\tilde{x}) \right|^2, \quad m > n, \quad (\text{A.4})$$

здесь вводится функция (см. [2])

$$\tilde{\psi}_n(\tilde{x}, t) = \exp(i\varphi t) \tilde{\psi}_n^{(0)}(\tilde{x} - \tilde{\eta}(t)) \exp(i\tilde{\eta}\tilde{x}), \quad (\text{A.5})$$

которая является аналитическим решением временного уравнения Шредингера для одномерного гармонического осциллятора, на который действует внешняя сила, зависящая от времени. Определим безразмерную функцию:

$$\tilde{\eta}(t) = \frac{M\omega}{\hbar} \eta(t), \quad (\text{A.6})$$

где $\eta(t)$ является решением уравнения для вынужденных колебаний классического осциллятора под действием внешней силы:

$$\ddot{\eta} + \omega^2 \eta = \frac{f(t)}{M}, \quad (\text{A.7})$$

с начальными условиями $\eta(-\infty) = \dot{\eta}(-\infty) = 0$, а также соответствующие производные:

$$\dot{\tilde{\eta}} = \frac{d\tilde{\eta}}{\omega dt} = \frac{d\tilde{\eta}}{dt}, \quad (\text{A.8})$$

$$\dot{\tilde{\eta}} = \sqrt{\frac{M}{\hbar\omega}} \dot{\eta}. \quad (\text{A.9})$$

С учетом сказанного получаем

$$W_{mn}(t) = \frac{1}{\pi 2^n n! 2^m m!} \left| \int_{-\infty}^{+\infty} d\tilde{x} \exp\left(-\frac{(\tilde{x} - \tilde{\eta})^2}{2}\right) \times \right. \\ \times H_n(\tilde{x} - \tilde{\eta}(t)) \exp(i\tilde{\eta}\tilde{x}) \times \\ \left. \times H_m(\tilde{x}) \exp\left(-\frac{\tilde{x}^2}{2}\right) \right|^2. \quad (\text{A.10})$$

Далее необходимо вычислить интеграл:

$$I_1 = \int_{-\infty}^{\infty} du \exp\left[-u^2 + u\tilde{\eta} - \frac{\tilde{\eta}^2}{2} + i\tilde{\eta}u\right] \times \\ \times H_m(u) H_n(u - \tilde{\eta}). \quad (\text{A.11})$$

Введем переменную

$$y = \frac{i}{2}\dot{\tilde{\eta}} + \frac{1}{2}\tilde{\eta}, \quad (\text{A.12})$$

тогда

$$I_1 = \exp\left(\frac{i}{2}\dot{\tilde{\eta}}\tilde{\eta} - \frac{\tilde{\eta}^2}{4} - \frac{\dot{\tilde{\eta}}^2}{4}\right) I_2(\tilde{\eta}, y), \quad (\text{A.13})$$

где

$$I_2(\tilde{\eta}, y) \equiv \int_{-\infty}^{\infty} du e^{-(u-y)^2} H_m(u) H_n(u - \tilde{\eta}) = \\ \stackrel{(u=x+y)}{=} \int_{-\infty}^{\infty} dx e^{-x^2} H_m(x+y) \times \\ \times H_n(x+y - \tilde{\eta}). \quad (\text{A.14})$$

Воспользуемся табличным интегралом (7.378) из [23]:

$$\int_{-\infty}^{\infty} e^{-x^2} H_m(x+w) H_n(x+z) dx = \\ = 2^m \sqrt{\pi} n! z^{m-n} L_n^{m-n}(-2wz), \quad m > n, \quad (\text{A.15})$$

где L_n^{m-n} — обобщенный полином Лагерра.

Для приведения $I_2(\tilde{\eta}, y)$ к табличному интегралу (A.15) необходимо сделать замену

$$w = y, \\ z = y - \tilde{\eta}. \quad (\text{A.16})$$

Тогда получаем

$$I_2(\tilde{\eta}, y) = \\ = 2^m \sqrt{\pi} n! (y - \tilde{\eta})^{m-n} L_n^{m-n}(-2y(y - \tilde{\eta})). \quad (\text{A.17})$$

Введем обозначение: $\arg = -2y(y - \tilde{\eta})$. Используя (A.16), находим

$$\arg = -2 \left(\frac{i}{2}\dot{\tilde{\eta}} + \frac{1}{2}\tilde{\eta}\right) \left(\frac{i}{2}\dot{\tilde{\eta}} + \frac{1}{2}\tilde{\eta} - \tilde{\eta}\right) = \\ = -2 \left(\frac{i}{2}\dot{\tilde{\eta}} + \frac{1}{2}\tilde{\eta}\right) \left(\frac{i}{2}\dot{\tilde{\eta}} - \frac{1}{2}\tilde{\eta}\right) = \frac{\dot{\tilde{\eta}}^2 + \tilde{\eta}^2}{2}, \quad (\text{A.18})$$

или в размерных переменных

$$\arg = \frac{M\dot{\eta}^2 + \omega^2 M\eta^2}{2\hbar\omega} \equiv \frac{\varepsilon(t)}{\hbar\omega} = \frac{A(t)}{\hbar\omega} = \nu(t), \quad (\text{A.19})$$

$$\nu(t) = \frac{A(t)}{\hbar\omega}, \quad (\text{A.20})$$

здесь $A(t)$ — работа над классическим осциллятором $\eta(t)$ под действием ЭМИ. Учитывая, что

$$|y - \tilde{\eta}|^2 = \frac{\dot{\tilde{\eta}}^2 + \tilde{\eta}^2}{4} = \frac{M(\dot{\eta}^2 + \omega^2\eta^2)}{4\hbar\omega} = \frac{\nu}{2}, \quad (\text{A.21})$$

находим

$$|I_2|^2 = 2^{2m} \pi (n!)^2 \frac{\nu^{m-n}}{2^{m-n}} |L_n^{m-n}(\nu)|^2 = \\ = 2^{n+m} \pi (n!)^2 \nu^{m-n} |L_n^{m-n}(\nu)|^2. \quad (\text{A.22})$$

Так как

$$|I_1|^2 = \exp(-\nu) |I_2|^2, \quad (\text{A.23})$$

получаем

$$W_{mn}(t) = \frac{1}{\pi 2^n n! 2^m m!} |I_1|^2. \quad (\text{A.24})$$

Окончательно находим вероятность возбуждения КО на переходе $n \rightarrow m$, $m > n$:

$$W_{mn}(t) = \widetilde{W}_{mn}[\nu(t)] = \\ = \frac{n!}{m!} \nu(t)^{m-n} \exp(-\nu(t)) |L_n^{m-n}(\nu(t))|^2. \quad (\text{A.25})$$

Для вывода формулы (11) используется следующее представление обобщенного полинома Лагерра [23]:

$$L_n^\alpha(x) = \frac{1}{n!} e^x x^{-\alpha} \frac{d^n}{dx^n} (e^{-x} x^{n+\alpha}). \quad (\text{A.26})$$

Подстановка (A.26) в (A.25) дает

$$\widetilde{W}_{mn}(\nu) = \frac{1}{n!m!} e^\nu \nu^{n-m} \left| \frac{d^n}{d\nu^n} (e^{-\nu} \nu^m) \right|^2. \quad (\text{A.27})$$

Учитывая, что

$$\begin{aligned} \nu^{n-m} \left| \frac{d^n}{d\nu^n} (e^{-\nu} \nu^m) \right|^2 &= \\ &= \nu^{m+n} e^{-2\nu} \left| \sum_{k=0}^{\min(n,m)} \frac{n!m!(-1)^k \nu^{-k}}{k!(m-k)!(n-k)!} \right|^2, \end{aligned} \quad (\text{A.28})$$

получаем

$$\begin{aligned} \widetilde{W}_{mn}(\nu) &= n!m! \nu^{m+n} e^{-\nu} \times \\ &\times \left| \sum_{k=0}^{\min(n,m)} \frac{(-1)^k \nu^{-k}}{k!(m-k)!(n-k)!} \right|^2. \end{aligned} \quad (\text{A.29})$$

Из (A.29), в частности, следует, что

$$\widetilde{W}_{mn}(\nu) = \widetilde{W}_{nm}(\nu). \quad (\text{A.30})$$

Таким образом, временная зависимость вероятности перехода $n \rightarrow m$, $m > n$, совпадает с таковой на обратном переходе $m \rightarrow n$.

6. ПРИЛОЖЕНИЕ В

Для энергии ЭМИ, поглощенной заряженным классическим осциллятором к моменту времени t , имеем

$$\varepsilon_{clas}(t) = q \int_{-\infty}^t \dot{x}(t') E(t') dt'. \quad (\text{B.1})$$

Решение уравнения для гармонического осциллятора выглядит следующим образом (например, см. [24]):

$$x(t) = \frac{q}{M} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{E(\omega') \exp(-i\omega't) d\omega'}{\omega_0^2 - \omega'^2 - 2i\gamma\omega'}, \quad (\text{B.2})$$

где γ — константа релаксации. Из формулы (B.1) следует выражение

$$\dot{x}(t) = -i \frac{q}{M} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{\omega' E(\omega') \exp(-i\omega't) d\omega'}{\omega_0^2 - \omega'^2 - 2i\gamma\omega'}. \quad (\text{B.3})$$

Подставляя формулу (B.3) в (B.1), получаем

$$\begin{aligned} \varepsilon_{clas}(t) &= \frac{q^2}{M} \int_{-\infty}^t dt' E(t') \times \\ &\times \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} E(\omega') \frac{i\omega' \exp(-i\omega't)}{\omega'^2 - \omega_0^2 + 2i\gamma\omega'}. \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Частотный интеграл в правой части уравнения (B.4) можно вычислить с помощью теоремы о вычетах. В пределе $\gamma \rightarrow 0$ этот интеграл равен

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{+\infty} \frac{d\omega'}{2\pi} \frac{i\omega' \exp(-i\omega'(t' - t''))}{\omega'^2 - \omega_0^2 - 2i\gamma\omega'} &= \\ &= \theta(t' - t'') \cos[\omega_0(t' - t'')], \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

где $\theta(\tau)$ — тета-функция Хевисайда. Подставляя правую часть уравнения (B.5) в формулу (B.4), находим

$$\begin{aligned} \varepsilon_{clas}(t) &= \frac{q^2}{M} \int_{-\infty}^t dt' E(t') \int_{-\infty}^{t'} dt'' E(t'') \cos[\omega_0(t' - t'')] = \\ &= \frac{q^2}{2M} \int_{-\infty}^t dt' E(t') \int_{-\infty}^t dt'' E(t'') \cos[\omega_0(t' - t'')] = \\ &= \frac{q^2}{2M} \left| \int_{-\infty}^t dt' E(t') \exp(i\omega_0 t') \right|^2. \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$

При переходе ко второму равенству в (B.6) использован тот факт, что подынтегральная функция симметрична относительно перестановки переменных интегрирования: $t' \leftrightarrow t''$.

ЛИТЕРАТУРА

1. J. Schwinger, Phys. Rev. **91**, 728 (1953).
2. K. Husimi, Prog. Theor. Phys. **9**, 381 (1953).
3. M. T. Hassan, A. Wirth, I. Grguras et al., Rev. Sci. Instrum. **83**, 111301 (2012).
4. M. Chini, K. Zhao, and Z. Chang, Nat. Photon. **8**, 178 (2014).
5. D. N. Makarov, M. R. Eseev, and K. A. Makarova, Opt. Lett. **44**, 3042 (2019).
6. D. N. Makarov, Opt. Express **27**, 31989 (2019).

7. D. N. Makarov, *Sci. Rep.* **8**, 8204 (2018).
8. V. A. Astapenko, *Appl. Phys. B* **126**, 110 (2020).
9. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, and V. S. Lisitsa, *J. Phys. B* **50**, 235601 (2017).
10. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, and V. S. Lisitsa, *Phys. Rev. A* **90**, 043421 (2014).
11. Z. Fu and M. Yamaguchi, *Sci. Rep.* **6**, 38264 (2016).
12. V. A. Astapenko and E. V. Sakhno, *Appl. Phys. B* **126**, 23 (2020).
13. S. Beaulieu, A. Comby, A. Clergerie et al., *Science* **358**, 1288 (2017).
14. M. Isinger, R. J. Squibb, D. Busto et al., *Science* **358**, 893 (2017).
15. A. Kaldun, A. Blättermann, S. Donsa, V. Stooß et al., *Science* **354**, 738 (2016).
16. V. Gruson, L. Barreau, A. Jiménez-Galan et al., *Science* **354**, 734 (2016).
17. В. А. Астапенко, *ЖЭТФ* **157**, 67 (2020).
18. E. Saldin, E. V. Schneidmiller, and M. V. Yurkov, *The Physics of Free Electron Lasers*, Springer, Berlin (1999).
19. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, and E. S. Khramov, *Matter Rad. Extrem. Lett.* **6**, 034001 (2021).
20. T. Tanaka, *Phys. Rev. Lett.* **114**, 044801 (2015).
21. A. Mak, G. Shamuilov, P. Salen et al., *Rep. Prog. Phys.* **82**, 025901 (2019).
22. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Квантовая механика*, Физматлит, Москва (2004).
23. И. С. Градштейн, И. М. Рыжик, *Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений*, Физматгиз, Москва (1963).
24. F. B. Rosmej, V. A. Astapenko, and V. S. Lisitsa, *Plasma Atomic Physics*, Springer Ser. **104** (2021).

ИСПОЛЬЗОВАНИЕ МОДЕЛЬНОГО УРАВНЕНИЯ БОЛЬЦМАНА ДЛЯ АНАЛИЗА ВЛИЯНИЯ ЭНЕРГИИ СВЯЗИ НА РАЗВИТИЕ КАСКАДА ВЫБИТЫХ АТОМОВ В ТВЕРДОМ ТЕЛЕ

Е. В. Метелжин^{}, М. В. Лебедева*

*Российский химико-технологический университет им. Д. И. Менделеева
124047, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 9 апреля 2021 г.,

после переработки 9 апреля 2021 г.

Принята к публикации 15 апреля 2021 г.

Рассматривается развитие каскада атомных столкновений в твердом теле, состоящем из одинаковых атомов с учетом их энергии связи в узлах решетки (ε_d). На основе решения модельного кинетического уравнения Больцмана получено выражение для функции распределения, описывающей нестационарное энергетическое распределение движущихся атомов. Предполагается, что рассеяние движущихся атомов является упругим и сферически-симметричным в системе центра инерции, а сечение взаимодействия является постоянной величиной. В частном случае $\varepsilon_d = 0$ найденное решение хорошо согласуется с точным решением, полученным ранее.

DOI: 10.31857/S0044451021080022

1. ВВЕДЕНИЕ

Проектирование и создание ядерных реакторов и термоядерных установок тесно связано с проблемой выбора для них радиационно-стойких материалов, поскольку их корпуса и отдельные элементы должны выдерживать продолжительное воздействие радиации. Именно радиационная стойкость материала во многом определяет время жизни установок и многие другие их физические характеристики.

Облучение твердых тел быстрыми частицами (в частности, нейтронами) приводит к тому, что атомы кристаллической решетки, получившие от налетающей частицы энергию, большую энергии связи (ε_d), вылетают из своих равновесных положений. В дальнейшем столкновения движущихся атомов с атомами, находящимися в узлах кристаллической решетки, приводят к появлению новых поколений выбитых атомов. В результате возникает так называемый каскад атомных столкновений. В результате развития каскада в твердом теле образуется целый комплекс дефектов (вакансии и междоузельные атомы, кластеры и т. д.), определяющий степень повреждения материала и его дальнейшие физические свой-

ства [1–5]. В связи с этим исследование энергетического распределения каскада атомных столкновений и его развития во времени представляет большой интерес.

Описание развития каскадов представляет собой достаточно сложную задачу. В связи с этим для ее решения с успехом используется компьютерное моделирование [2, 6, 7]. Однако аналитические решения соответствующей задачи для линейного уравнения Больцмана, несмотря на то, что они существуют в исключительных случаях, также представляют значительный интерес. Это связано с тем, что аналитические решения дают наглядное представление о протекающем процессе и его особенностях. Кроме того, эти результаты могут быть использованы для тестирования достаточно сложных численных расчетов.

Исследованию развития каскадов атомных столкновений в твердом теле было посвящено достаточно большое количество работ [8–20]. В работе [8] с помощью построенной модельной индикатрисы рассеяния было получено приближенное стационарное энергетическое распределение каскада движущихся атомов для произвольных потенциалов межатомного взаимодействия. В работах [9, 10] анализировалась возможность образования субкаскадов — ряда неперекрывающихся меж-

^{*} E-mail: sitech47@mail.ru

ду собой областей в процессе развития каскада атомных столкновений. Оценка пороговой энергии образования субкаскадов была проведена в работе [11]. В работе [12] была разработана теоретическая модель для исследования образования каскадов и субкаскадов атомных столкновений в облучаемых твердых телах, основанная на использовании линейного кинетического уравнения Больцмана. На основе расширенного толкования понятия первично выбитый атом (ПВА) в [12] был сформулирован критерий для определения пороговой энергии образования субкаскадов в твердом теле и получены формулы для определения средних размеров и их числа в зависимости от энергии ПВА. На основе результатов, представленных в [12], в работе [13] были проведены численные расчеты для конкретных материалов, согласующиеся с экспериментальными данными.

В работе [14] на основе решения кинетического уравнения Больцмана была рассчитана функция распределения по энергиям, описывающая стационарное энергетическое распределение каскада движущихся атомов при степенном потенциале взаимодействия ($U \sim 1/r^n$ [15]) с учетом энергии связи атомов в узлах решетки. Кроме того, на основе представлений, развитых в [12], в работе [16] были определены пространственные и временные характеристики первично выбитых релятивистских электронов, замедляющихся в веществе за счет ионизационных потерь. В работе [17] эти представления были использованы для вычисления стационарного энергетического распределения релятивистских электронов, замедляющихся в веществе за счет ионизационных потерь с учетом их размножения.

В работах [18, 19] было получено точное решение кинетического уравнения Больцмана, описывающее нестационарное энергетическое распределение каскада движущихся атомов с учетом их размножения. Предполагалось, что материал состоит из одинаковых атомов, рассеяние движущихся атомов является упругим и сферически-симметричным в системе центра инерции, а энергия связи атомов в узлах решетки не учитывалась ($\varepsilon_d = 0$). В [18] предполагалось, что сечение рассеяния является постоянной величиной ($\Sigma = \text{const}$), а в [19] оно полагалось обратно пропорциональным скорости ($\Sigma = \Sigma_0/v$; $\Sigma_0 = \text{const}$). В работе [20] в тех же предположениях ($\varepsilon_d = 0$; $\Sigma = \text{const}$) с использованием P_1 и транспортного приближений было получено нестационарное пространственно-энергетическое распределение каскада выбитых атомов.

В настоящей работе на основе решения модельного кинетического уравнения Больцмана определяется нестационарное пространственно-энергетическое распределение каскада движущихся атомов с учетом их энергии связи в узлах решетки. Предполагается, что рассеяние движущихся атомов является упругим и сферически-симметричным в системе центра инерции, а сечение рассеяния считается постоянным. Полученное решение при $\varepsilon_d = 0$ хорошо согласуется с точным решением аналогичной задачи (см. [18]).

2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

Рассмотрим распространение каскада выбитых атомов в твердом теле, состоящем из одинаковых атомов. Кинетическое уравнение Больцмана, описывающее этот процесс, имеет следующий вид [12, 21]:

$$\begin{aligned} \frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(E, t)}{\partial t} + \Sigma(E) \Phi(E, t) = & \\ = \int_E^{E_0} dE' P(E' \rightarrow E) \Sigma(E') \Phi(E', t) + & \\ + \int_{E+\varepsilon_d}^{E_0} dE' P(E' \rightarrow E' - E - \varepsilon_d) \times & \\ \times \Sigma(E') \Phi(E', t) + N_0 \delta(E - E_0) \delta(t), & \quad (1) \end{aligned}$$

где $f(E, t)dE$ — число атомов с энергией E в интервале dE в момент времени t в единице объема; $\Phi(E, t) = vf(E, t)$ — поток движущихся атомов; v — их скорость;

$$P(E' \rightarrow E) = \Sigma(E' \rightarrow E)/\Sigma(E')$$

— индикатриса рассеяния (вероятность того, что движущийся атом с энергией E' в результате рассеяния перейдет в единичный интервал энергий вблизи значения E); $\Sigma(E' \rightarrow E)$ и $\Sigma(E')$ — дифференциальное и полное макроскопические сечения рассеяния атомов; $\delta(x)$ — дельта-функция Дирака; E_0 — начальная энергия движущихся атомов; N_0 — их полное число, испущенное в единицу объема; ε_d — энергия связи атомов в узлах решетки.

Первый интеграл, стоящий в правой части кинетического уравнения (1), описывает переход движущегося атома с энергией E' в состояние с энергией E . Второй интеграл описывает образование выбитого атома с энергией E , когда движущийся атом перешел в состояние с энергией $(E' - E - \varepsilon_d)$.

Точное решение уравнения (1), как отмечалось выше, было получено в работах [18, 19] для упругого, сферически-симметричного рассеяния в системе центра масс без учета энергии связи атомов в узлах решетки ($\varepsilon_d = 0$).

Из уравнения (1) вытекают следующие законы сохранения полного числа частиц и энергии:

$$\frac{dN}{dt} = \int_{\varepsilon_d}^{E_0} dE p(E) \Sigma(E) \Phi(E, t), \quad (2)$$

$$\frac{dE(t)}{dt} = - \int_0^{E_0} dE \Delta_0(E) \Sigma(E) \Phi(E, t), \quad (3)$$

где

$$N(t) = \int_0^{E_0} dE f(E, t), \quad (4)$$

$$E(t) = \int_0^{E_0} dE E f(E, t),$$

$$p(E) = \int_0^{E-\varepsilon_d} P(E \rightarrow E') dE', \quad (5)$$

а функция $\Delta_0(E)$ определяется следующими выражениями:

$$\Delta_0(E) = \Delta(E) = \int_0^E dE' (E - E') P(E \rightarrow E') \quad (6)$$

при $E \leq \varepsilon_d$,

$$\Delta_0 = p(E) \varepsilon_d + \int_{E-\varepsilon_d}^E dE' (E - E') P(E \rightarrow E') \quad (7)$$

при $E \geq \varepsilon_d$.

Величина $p(E)$ представляет собой вероятность того, что движущийся атом с энергией E передает атому решетки энергию, большую ε_d . Очевидно, что при $E \leq \varepsilon_d$ величина $p(E)$ обращается в нуль.

Из соотношений (3), (6), (7) вытекает, что потери энергии движущимися атомами происходят таким образом, что при $E \leq \varepsilon_d$ движущийся атом не может выбить атом из узла решетки. В одном таком соударении движущийся атом теряет в среднем количество энергии $\Delta(E)$. При $E \geq \varepsilon_d$ потери энергии

обусловлены тем, что часть энергии ($p(E) \varepsilon_d$) движущийся атом тратит на выбивание атома из узла решетки, а часть энергии теряет в столкновениях с передачей энергии покоящемуся атому меньшей ε_d (второе слагаемое в (7)), не выбивая его из узла решетки.

Упростим уравнение (1), представив его в следующем виде [8]:

$$\begin{aligned} \frac{1}{v} \frac{\partial \Phi(E, t)}{\partial t} + [\Sigma(E) + \delta \Sigma_1(E)] \Phi(E, t) = \\ = \int_E^{E_0} [\Sigma(E') + \delta \Sigma_1(E')] P(E' \rightarrow E) \Phi(E', t) dE' + \\ + \int_E^{E_0} [\Sigma(E') + \delta \Sigma_2(E')] P(E' \rightarrow E' - E) \times \\ \times \Phi(E', t) dE' + N_0 \delta(E - E_0) \delta(t). \quad (8) \end{aligned}$$

Выражения для $\delta \Sigma_1(E)$ и $\delta \Sigma_2(E)$ получим, потребовав, чтобы из уравнения (8) вытекали те же законы сохранения (2), (3), что и из исходного уравнения (1). Проинтегрировав уравнение (8) (см. (4)), найдем

$$\delta \Sigma_1(E) = \Sigma(E) \left(\frac{\Delta_0(E)}{\Delta(E)} + p(E) - 1 \right), \quad (9)$$

$$\delta \Sigma_2(E) = -\Sigma(E) (1 - p(E)). \quad (10)$$

При E , стремящемся к ε_d , функции $\delta \Sigma_1(E)$ и $\delta \Sigma_2(E)$ принимают значения соответственно 0 и $-\Sigma(E)$, в уравнении (8) второй интеграл обращается в нуль, и оно переходит в обычное уравнение замедления.

Далее будем считать, что рассеяние движущихся атомов на покоящихся является сферически-симметричным в системе центра инерции и описывается индикатрисой рассеяния, имеющей следующий вид [21]:

$$P(E' \rightarrow E) = \frac{1}{E'}. \quad (11)$$

В таком случае при $E \geq \varepsilon_d$ уравнение (8) принимает следующий вид (5)–(7), (9), (10):

$$\begin{aligned} \frac{1}{v \Sigma(E)} \frac{\partial \Psi(E, t)}{\partial t} + \left[1 + \frac{\varepsilon_d}{E} - \left(\frac{\varepsilon_d}{E} \right)^2 \right] \Psi(E, t) = \\ = \int_E^{E_0} \frac{dE'}{E'} \left[2 - \left(\frac{\varepsilon_d}{E'} \right)^2 \right] \Psi(E', t) + \\ + N_0 \delta(t) \delta(E - E_0), \quad (12) \end{aligned}$$

где $\Psi(E, t) = \Sigma(E)\Phi(E, t)$ — плотность соударений.

При $E = \varepsilon_d$ уравнение (12) переходит в обычное уравнение замедления.

Следует отметить, что в работе [22] был проведен менее точный учет влияния энергии связи на развитие каскада, являющийся частным случаем представленного выше подхода. В [22] полагалось, что потери энергии происходят только за счет вырывания атомов из узла решетки:

$$\frac{d}{dt}E(t) = -\varepsilon_d \frac{d}{dt}N(t). \quad (13)$$

Между (2) и (3) будет существовать связь в виде (13), если положить в них $p = 1$ и $\Delta_0 = \varepsilon_d$. Таким образом, в [22] не учитывались соударения, сопровождающиеся передачей энергии, меньшей ε_d , что привело к завышенному значению каскадной функции (см. ниже).

3. РЕШЕНИЕ КИНЕТИЧЕСКОГО УРАВНЕНИЯ

Рассмотрим решение уравнения (12). Применяя к обеим частям уравнения преобразование Лапласа по времени [23]

$$\tilde{\Psi}(E, p) = \int_0^\infty \exp(-st)\Psi(E, t) dt \quad (14)$$

получим

$$\begin{aligned} \left[\frac{s}{v\Sigma} + 1 + \frac{\varepsilon_d}{E} - \left(\frac{\varepsilon_d}{E} \right)^2 \right] \tilde{\Psi}(E, s) = \\ = \int_E^{E_0} \frac{dE'}{E'} \left[2 - \left(\frac{\varepsilon_d}{E'} \right)^2 \right] \tilde{\Psi}(E', s) + N_0 \delta(E - E_0). \end{aligned} \quad (15)$$

Выделим в решении уравнения (15) нерассеянное излучение

$$\begin{aligned} \tilde{\Psi}(E, s) = \tilde{\Psi}_0(E, s) + \\ + \frac{N_0 \delta(E - E_0)}{\left[s/v\Sigma + 1 + \varepsilon_d/E - (\varepsilon_d/E)^2 \right]}. \end{aligned} \quad (16)$$

В таком случае для определения функции $\tilde{\Psi}_0(E, p)$ (рассеянное излучение) получим следующее уравнение:

$$\begin{aligned} \left[\frac{s}{v\Sigma} + 1 + \frac{\varepsilon_d}{E} - \left(\frac{\varepsilon_d}{E} \right)^2 \right] \tilde{\Psi}_0(E, s) = \\ = \int_E^{E_0} \frac{dE'}{E'} \left[2 - \left(\frac{\varepsilon_d}{E'} \right)^2 \right] \tilde{\Psi}_0(E', s) + \\ + \frac{N_0 \left[2 - (\varepsilon_d/E_0)^2 \right]}{E_0 \left[s/v_0\Sigma + 1 + \varepsilon_d/E_0 - (\varepsilon_d/E_0)^2 \right]}. \end{aligned} \quad (17)$$

Далее будем полагать, что сечение рассеяния постоянно ($\Sigma = \text{const}$). С учетом этого обстоятельства, дифференцируя (17) по энергии, найдем уравнение для определения функции $\tilde{\Psi}_0(E, p)$:

$$\frac{d\tilde{\Psi}_0}{\tilde{\Psi}_0} = -\frac{dE}{E} \frac{\left[2 - s/2v\Sigma - \varepsilon_d/E + (\varepsilon_d/E)^2 \right]}{\left[1 + s/v\Sigma + \varepsilon_d/E - (\varepsilon_d/E)^2 \right]}. \quad (18)$$

Граничное условие для (18) легко получить из (17):

$$\begin{aligned} \tilde{\Psi}_0(E_0, s) = \\ = \frac{N_0 \left[2 - (\varepsilon_d/E_0)^2 \right]}{E_0 \left[s/v_0\Sigma + 1 + \varepsilon_d/E_0 - (\varepsilon_d/E_0)^2 \right]^2}. \end{aligned} \quad (19)$$

В таком случае решение уравнения (18) легко определить:

$$\begin{aligned} \tilde{\Psi}_0(E, s) = \frac{N_0 \left[2 - (\varepsilon_d/E_0)^2 \right]}{E_0 \left[s/v_0\Sigma + 1 + \varepsilon_d/E_0 - (\varepsilon_d/E_0)^2 \right]^2} \times \\ \times \exp \left\{ \int_E^{E_0} \frac{dE'}{E'} \frac{\left[2 - s/2v\Sigma - \varepsilon_d/E' + (\varepsilon_d/E')^2 \right]}{\left[1 + s/v\Sigma + \varepsilon_d/E' - (\varepsilon_d/E')^2 \right]} \right\}. \end{aligned} \quad (20)$$

Вычисление оригинала по формуле (20) является достаточно сложной задачей. В связи с этим функцию распределения $\Psi_0(E, t)$ (рассеянное излучение) будем искать в следующем виде:

$$\Psi_0(E, t) = A(E)t^{b(E)} \exp[-c(E)t], \quad (21)$$

где параметры $A(E)$, $b(E)$, $c(E)$ легко определяются через временные моменты (см., например, [21])

$$\begin{aligned} \langle t^n(E) \rangle = \int_0^\infty dt t^n \Psi_0(E, t) / \\ / \int_0^\infty dt \Psi_0(E, t) \quad (n = 1, 2, \dots) \end{aligned} \quad (22)$$

от функции распределения (20), являющейся точным решением уравнения (15).

Используя (21), (22), найдем

$$\begin{aligned} A(E) &= \frac{\tilde{\Psi}_0(E, s=0)c(E)^{b(E)+1}}{\Gamma[b(E)+1]}, \\ b(E) &= \frac{\langle t(E) \rangle^2}{\langle t^2(E) \rangle - \langle t(E) \rangle^2} - 1, \\ c(E) &= \frac{\langle t(E) \rangle}{\langle t^2(E) \rangle - \langle t(E) \rangle^2}, \end{aligned} \quad (23)$$

где $\Gamma(x)$ – гамма-функция [24].

Соответствующие временные моменты можно найти с помощью (20) следующим образом:

$$\begin{aligned} \langle t^n(E) \rangle &= \\ &= (-1)^n \left\{ \left[\frac{\partial^n}{\partial s^n} \tilde{\Psi}_0(E, s) \right] / \tilde{\Psi}_0(E, s) \right\}_{s=0}. \end{aligned} \quad (24)$$

Используя (20), (24), получим

$$\begin{aligned} \tilde{\Psi}_0(E, s=0) &= \frac{N_0}{E_0} \frac{(2E_0^2 - \varepsilon_d^2)}{E_0^2 + E_0\varepsilon_d - \varepsilon_d^2} \times \\ &\times \frac{E}{E_0} \left(\frac{E_0^2 + E_0\varepsilon_d - \varepsilon_d^2}{E^2 + E\varepsilon_d - \varepsilon_d^2} \right)^{3/2} \times \\ &\times \left[\frac{2E_0 + \varepsilon_d(1 + \sqrt{5})}{2E_0 + \varepsilon_d(1 - \sqrt{5})} \right]^{3/2\sqrt{5}} \times \\ &\times \left[\frac{2E + \varepsilon_d(1 - \sqrt{5})}{2E + \varepsilon_d(1 + \sqrt{5})} \right]^{3/2\sqrt{5}}, \end{aligned} \quad (25)$$

$$\begin{aligned} \langle t(E) \rangle v_0 \Sigma &= \frac{2E_0^2}{E_0^2 + E_0\varepsilon_d - \varepsilon_d^2} + \\ &+ \frac{1}{2} \int_E^{E_0} dE \sqrt{EE_0} \frac{5E^2 - E\varepsilon_d + \varepsilon_d^2}{(E^2 + E\varepsilon_d - \varepsilon_d^2)^2}, \end{aligned} \quad (26)$$

$$\begin{aligned} \langle t^2(E) \rangle v_0^2 \Sigma^2 &= \frac{6E_0^2}{E_0^2 + E_0\varepsilon_d - \varepsilon_d^2} + \frac{2E_0^2}{E_0^2 + E_0\varepsilon_d - \varepsilon_d^2} \times \\ &\times \int_E^{E_0} dE \sqrt{EE_0} \frac{5E^2 - E\varepsilon_d + \varepsilon_d^2}{(E^2 + E\varepsilon_d - \varepsilon_d^2)^2} + \\ &+ \frac{1}{4} \left[\int_E^{E_0} dE \sqrt{EE_0} \frac{5E^2 - E\varepsilon_d + \varepsilon_d^2}{(E^2 + E\varepsilon_d - \varepsilon_d^2)^2} \right]^2 + \\ &+ \int_E^{E_0} dE E_0 E^2 \frac{5E^2 - E\varepsilon_d + \varepsilon_d^2}{(E^2 + E\varepsilon_d - \varepsilon_d^2)^3}. \end{aligned} \quad (27)$$

Таким образом, окончательно функцию распределения $f_0(E, t)$ (рассеянное излучение) можно представить в следующем безразмерном виде:

$$\begin{aligned} f'(E, \tau) &= \frac{f_0(E, t) E_0}{N_0} = \\ &= f'_0(E) \frac{[c'(E)]^{b(E)+1}}{\Gamma[b(E)+1]} \tau^b \exp[-c'(E)\tau], \end{aligned} \quad (28)$$

где $\tau = v_0 \Sigma t$, $c'(E) = c(E)/(v_0 \Sigma)$, $f'_0(E) = \tilde{\Psi}_0(E, s=0) E_0 / (N_0 v \Sigma)$ (см. (25)).

4. АНАЛИЗ ПОЛУЧЕННОГО РЕШЕНИЯ

Положив в (20) $\varepsilon_d = 0$ и проведя интегрирование, получим точное решение соответствующей задачи без учета энергии связи (см. в [18] формулу (10)).

Оценим точность использования в качестве решения уравнения (15) функции распределения в виде (21). На рис. 1 представлены зависимости функции распределения от времени, построенные для различных значений энергии по формуле (28) без учета энергии связи ($\varepsilon_d = 0$) и являющиеся точным решением соответствующей задачи (см. (12) в [18]). На рисунке видно, что функция (28) при $\varepsilon_d = 0$ с

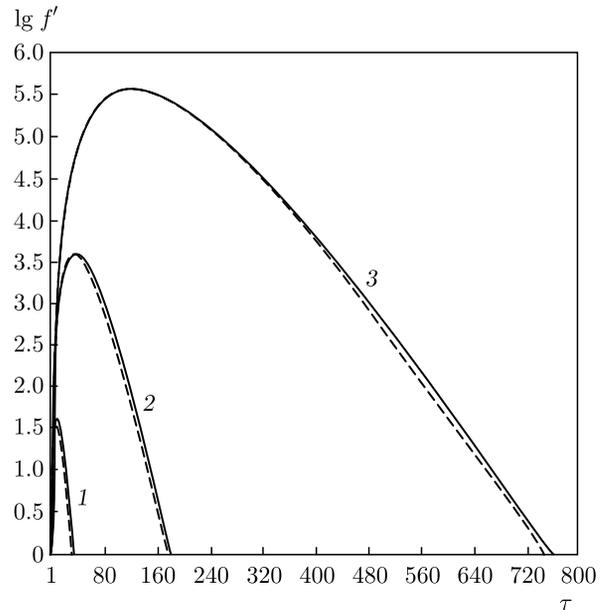


Рис. 1. Зависимость функции распределения $f'(\tau)$ от безразмерного времени τ , построенная по формуле (28) при $\varepsilon_d = 0$ (сплошные кривые) и по формуле (12) из [18] (штриховые кривые) для различных значений безразмерной энергии $\varepsilon = E/E_0$: 1 – $\varepsilon = 10^{-1}$, 2 – $\varepsilon = 10^{-2}$, 3 – $\varepsilon = 10^{-3}$

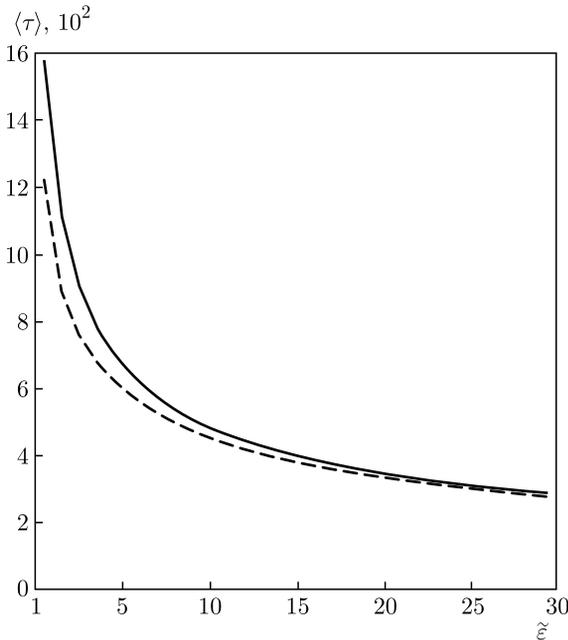


Рис. 2. Зависимости среднего времени замедления ($\langle \tau \rangle = \Sigma v_0 \langle t \rangle$) от безразмерной энергии $\tilde{\epsilon} = E/\epsilon_d$ (штриховая кривая — с учетом энергии связи; сплошная кривая — при $\epsilon_d = 0$), построенные по формуле (26)

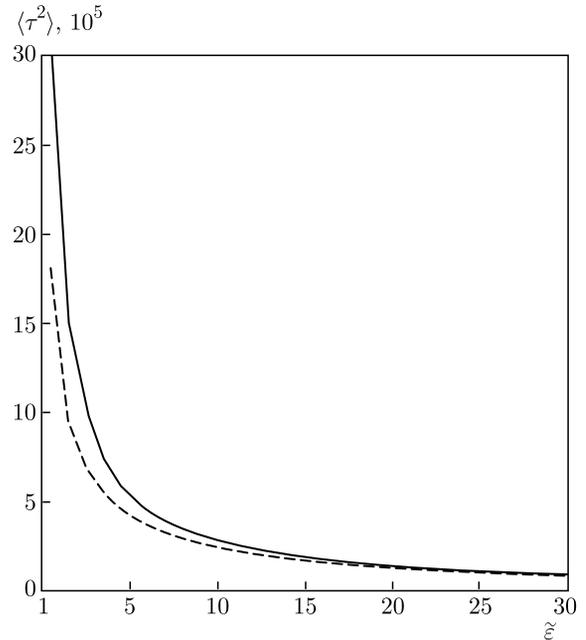


Рис. 3. Зависимости среднего квадрата времени замедления ($\langle \tau^2 \rangle = \Sigma^2 v_0^2 \langle t^2 \rangle$) от безразмерной энергии $\tilde{\epsilon} = E/\epsilon_d$ (штриховая кривая — с учетом энергии связи; сплошная кривая — при $\epsilon_d = 0$), построенные по формуле (27)

хорошей точностью описывает точное решение соответствующей задачи из [18].

Из рис. 2 и 3 следует, что учет энергии связи приводит к уменьшению среднего времени замедления и квадрата этой величины (при расчетах полагалось, что $E_0/\epsilon_d = 10^5$). Отмеченное обстоятельство очевидно обусловлено тем, что при учете энергии связи учитываются потери энергии на выбивание атомов из узлов решетки.

На рис. 4 представлена зависимость функции распределения от времени, построенная по формуле (28) для различных значений энергии как с учетом, так и без учета энергии связи (полагалось, что $E_0/\epsilon_d = 10^5$). Из приведенных результатов следует, что при учете энергии связи функция распределения достигает максимума при меньших значениях времени (см. рис. 2) и ее значение в максимуме существенно меньше. Очевидно, что последнее обстоятельство обусловлено тем, что при учете энергии связи образуется конечное число выбитых атомов, а при $\epsilon_d = 0$ оно неограниченно возрастает (см. [18]). Следует отметить, что при увеличении энергии эти различия становятся менее заметными и при $E \geq 20\epsilon_d$ они практически исчезают.

Найдем каскадную функцию $\nu(E_0)$, представляющую собой полное число атомов решетки, приходящихся на один первично выбитый атом с энергией

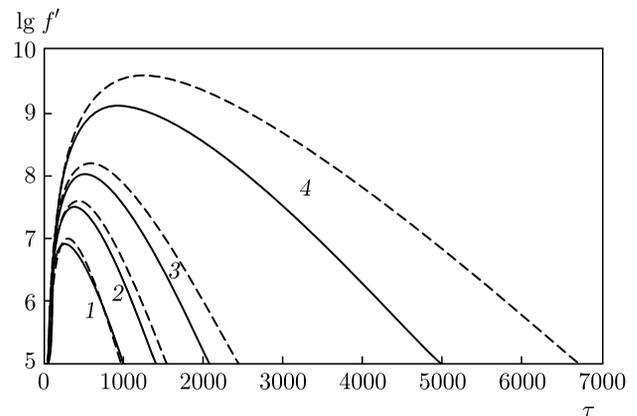


Рис. 4. Зависимость функции распределения от времени, построенная по формуле (28) при различных значениях безразмерной энергии $\tilde{\epsilon} = E/\epsilon_d$: 1 — $\tilde{\epsilon} = 20$, 2 — $\tilde{\epsilon} = 10$, 3 — $\tilde{\epsilon} = 5$, 4 — $\tilde{\epsilon} = 1$, при учете (сплошные кривые) и без учета (штриховые кривые) энергии связи

E_0 . Из выражения (2) получим, что полное число выбитых атомов равно

$$N(E_0) = \int_{\epsilon_d}^{E_0} dE p(E) \int_0^{\infty} dt \Psi(E, t) \quad (29)$$

или

$$\begin{aligned} \nu(E_0) &= \frac{N(E_0)}{N_0} = \\ &= \frac{1}{N_0} \int_{\varepsilon_d}^{E_0} dE p(E) \tilde{\Psi}_0(E, s=0), \quad (30) \end{aligned}$$

где $\tilde{\Psi}_0(E, s=0)$ определяется формулой (25).

Подставив (25) в (30) и пренебрегая членами порядка ε_d/E_0 по сравнению с единицей, для каскадной функции получим следующее выражение (см. также [8]):

$$\begin{aligned} \nu(E_0) &= \nu_0 \left(\frac{E_0}{\varepsilon_d} \right), \\ \nu_0 &\simeq 2 \left(\frac{3 - \sqrt{5}}{3 + \sqrt{5}} \right)^{3/2\sqrt{5}} \simeq 0.55. \end{aligned} \quad (31)$$

Численные расчеты, проведенные по формуле (30), показали, что при изменении E_0 от 10^6 до 10^3 эВ значение ν_0 изменяется от 0.55 до 0.53 (при это полагалось, что $\varepsilon_d = 10$ эВ). Полученное выражение (31) хорошо согласуется с формулой Кинчина–Пиза ($\nu_0 = 0.5$ см. [2]).

5. ВЫВОДЫ

На основе решения модельного кинетического уравнения Больцмана получена функция распределения, описывающая нестационарное энергетическое распределение каскада замедляющихся атомов в твердом теле с учетом их размножения. Предполагалось, что твердое тело состоит из одинаковых атомов, энергия связи которых равна ε_d . Кроме того, полагалось, что сечение рассеяния движущихся атомов является упругим и сферически-симметричным в системе центра инерции, а его величина постоянна.

Следует отметить, что интегралы, входящие в (26), (27), выражаются через элементарные функции (см. [24]). В таком случае сама функция распределения (28) при сделанных предположениях представляет собой относительно простое, хотя и громоздкое алгебраическое выражение, которое при $\varepsilon_d = 0$ хорошо согласуется с точным решением соответствующей задачи (см. рис. 1). На основе полученной функции распределения (28) проанализированы особенности развития каскада, связанные с учетом энергии связи атомов и имеющие общий характер.

Кроме того, очевидно, что решение уравнения (17) в виде (21) может быть получено и для произвольной зависимости сечения рассеяния от энергии.

В этом случае временные моменты (см. (22)–(24)) будут содержать интегралы, требующие численных расчетов для вычисления и анализа самой функции распределения.

ЛИТЕРАТУРА

1. К. Лейман, *Взаимодействие излучения с твердым телом и образование элементарных дефектов*, Атомиздат, Москва (1979).
2. С. Вас Гэри, *Основы радиационного материаловедения. Металлы и сплавы*, Техносфера, Москва (2014).
3. И. А. Портных, А. В. Козлов, ФММ **119**, 636 (2018).
4. Л. С. Васильев, С. Л. Ломаев, ФММ **120**, 771 (2019).
5. А. Р. Исинбаев, И. А. Портных, А. В. Козлов, ФММ **121**, 99 (2020).
6. Р. Е. Воскобойников, ФММ **120**, 3 (2019).
7. Р. Е. Воскобойников, ФММ **121**, 10 (2020).
8. A. I. Ryazanov and E. V. Metelkin, Rad. Effects **52**, 15 (1980).
9. Y. Sato, S. Kojimo, T. Yoshiie et al., J. Nucl. Mater. **179–181**, 901 (1991).
10. Y. Sato, T. Yoshiie, and M. Kiritani, J. Nucl. Mater. **191–194**, 1101 (1992).
11. Е. В. Метелкин, А. И. Рязанов, Атомная энергия **83**, 183 (1997).
12. Е. В. Метелкин, А. И. Рязанов, Е. В. Семенов, ЖЭТФ **134**, 469 (2008).
13. A. I. Ryazanov, E. V. Metelkin, and E. V. Semenov, J. Nucl. Mater. **386–388**, 132 (2009).
14. A. A. Aleksandrov, V. A. Akatev, E. V. Metelkin, and E. J. Barycheva, Herald of the Bauman Moscow State Technical University, Series Natural Sciences №1, 27 (2019).
15. J. Lindhard, V. Nielsen, and M. Scharff, Mat. Fys. Medd. Dan. Vid. Selsk. **36**, 1 (1968).
16. В. А. Акатьев, Е. В. Метелкин, А. М. Савинов, Атомная энергия **122**, 295 (2017).
17. Е. В. Метелкин, М. В. Лебедева, А. В. Черняев, Атомная энергия **125**, 184 (2018).

18. A. A. Aleksandrov, V. A. Akatev, E. V. Metelkin, and E. J. Barycheva, Herald of the Bauman Moscow State Technical University, Series Natural Sciences, № 6, 40 (2019).
19. Е. В. Метелкин, А. Н. Манвелов, А. Я. Пономарев и др., ФММ 120, 892 (2019).
20. Е. В. Метелкин, В. А. Акатьев, В. И. Шмырев и др., ЖЭТФ 156, 387 (2019).
21. А. И. Исаков, М. В. Казарновский, Ю. А. Медведев и др., *Нестационарное замедление нейтронов. Основные закономерности и некоторые приложения*, Наука, Москва (1984).
22. Е. В. Метелкин, М. В. Лебедева, ФММ 122, 446 (2021).
23. Г. Бейтман, А. Эрдейи, *Таблицы интегральных преобразований*, Том 1. Преобразования Фурье, Лапласа, Меллина, Наука, Москва (1969).
24. И. С. Градштейн, И. М. Рыжик, *Таблицы интегралов, сумм, рядов и произведений*, Наука, Москва (1971).

КООПЕРАТИВНОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ КАК СУБОРДИНИРОВАННЫЙ СЛУЧАЙНЫЙ ПРОЦЕСС

А. М. Башаров ^{a,b*}, А. И. Трубилко ^{c**}

^a Научно-исследовательский центр «Курчатовский институт»
123182, Москва, Россия

^b Московский физико-технический институт
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия

^c Санкт-Петербургский университет ГПС МЧС России
196105, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 19 апреля 2021 г.,
после переработки 19 апреля 2021 г.
Принята к публикации 23 апреля 2021 г.

Кооперативное излучение двухуровневых примесей в сложной диэлектрической среде представлено как субординированный случайный процесс, управляемый альфа-устойчивым процессом с параметром альфа, определяемым характерными временами затухания излучения. Найдены отличия от обычного сверхизлучения. Привлеченные физические основания для введения субординации полезны и в других излучательных задачах.

DOI: 10.31857/S0044451021080034

1. ВВЕДЕНИЕ

Кооперативное излучение ансамбля из N_p возбужденных атомов (квантовых частиц), известное как сверхизлучение (СИ), состоит в сокращении в N_p раз длительности времени высвечивания энергии по сравнению со спонтанным излучением одиночного атома, задержке его пика относительно начала излучения и возрастании в N_p^2 раз интенсивности. Как и в случае излучения одиночного атома, при рассмотрении кооперативного излучения используется марковское приближение, в котором имеет место экспоненциальный распад одиночного возбуждения — и в случае одиночного атома, и в случае симметричного состояния ансамбля атомов возбужденное состояние распадается как $\exp(-t/\tau)$ со своим значением времени испускания τ для каждого случая. Между тем многочисленные экспериментальные [1–6] и теоретические [7–10] исследования излучения одиночного примесного атома в сложных диэлектрических средах показывают отличие от экспоненциального закона. Эти отличия обсуждают в терминах или закономерностей типа Коль-

роуша–Вильямса–Уотса $\exp((-t/\tau)^\beta)$, $0 < \beta < 1$ [11–15], или степенной асимптотики $1/(1 + (t/\tau)^\delta)$, $\delta > 0$. Неэкспоненциальный распад связывают также с немарковской динамикой [16–20]. Его часто обсуждают в связи с бозе-конденсатом [21–23]. Неэкспоненциальный распад вследствие суммирования различных экспонент неинтересен в нашем контексте.

Под сложными диэлектрическими средами (матрицами) обычно понимают структуры из многоатомных молекул, в том числе и пленки, например, пленки из $\text{CH}_3\text{NH}_3\text{PbI}_3$ [24]. Также разные виды фотонных кристаллов можно рассматривать как сложные диэлектрические среды. Считается, что спектр линейных волн в сложных средах имеет степенную плотность фотонных состояний вблизи некоторых точек спектра, например, дна разрешенной зоны фотонных состояний. На этом основан и развиваемый математический аппарат для некоторого описания излучательных процессов в сложных средах. Оператор взаимодействия с линейными волнами в таком представлении выражают через дробную производную по времени [25]. Вообще исследования излучения одиночных молекул в различных диэлектрических средах демонстрируют неэкспоненциальный распад.

* E-mail: basharov@gmail.com

** E-mail: trubilko.andrey@gmail.com

В настоящей статье предлагается новый взгляд на коллективное излучение примесных атомов в сложных диэлектрических средах. Подчеркнем, что и в рамках имеющихся подходов коллективное излучение в сложных средах не рассматривалось. Наш подход основан на следующих двух идеях.

В сложных диэлектрических средах возможны щели в плотности фотонных состояний и прыжковое поведение динамики примесных атомов. Тогда примесные атомы, занимая различные положения в среде и вследствие этого имея различные частоты рабочего перехода и различные константы взаимодействия, могут оказаться в ситуации, когда в первом порядке алгебраической теории возмущений они не излучают [26]. Разброс в частотах примесных атомов приводит к эффекту, известному как неоднородное уширение спектральной линии примесных атомов. Это некоторая мера (в математическом смысле) распределения атомов. Напомним, что подход, основанный на понятии меры в динамике частицы, можно ввести, если вместо рассмотрения временной траектории частицы учитывать долю времени ($\Delta t/T$), проводимого частицей в данном объеме ΔV фазового пространства. Тогда в случае эргодичности

$$\lim_{T \rightarrow \infty} \Delta t/T = \int_{\Delta V} w dV,$$

где w — плотность меры. Есть разные временные динамики, приводящие к одной и той же мере. В нашем контексте это означает, что вместо рассмотрения неоднородного уширения ансамбля примесных частиц в сложных диэлектрических средах можно рассматривать различную излучательную динамику частицы в вакууме, а именно, считать, что взаимодействие с электромагнитным вакуумом, плотность фотонного состояния которого не имеет особенностей в рассматриваемой области спектра, «включается» случайным образом, т. е. описывается некоторым случайным процессом. Самое простое, однако, рассматривать не включение–выключение взаимодействия с вакуумным электромагнитным полем, а некоторую динамику константы взаимодействия с вакуумным электромагнитным полем. В обоих случаях, очевидно, имеем немарковское взаимодействие. Изменение «константы» будем также рассматривать как случайный процесс.

Прыжковое изменение константы взаимодействия с вакуумным электромагнитным полем предлагается оценивать следующим образом. Спонтанное излучение можно представить как квантовое броуновское движение [27] или моделировать классическим винеровским процессом [28–30]. Пусть, условно, с константой взаимодействия K_1 в некоторый временной интервал совершается броуновский скачок на некоторую величину Δ_1 , зависящую от K_1 . При другой константе взаимодействия K_2 броуновский скачок совершился бы за тот же временной интервал времени на Δ_2 . Однако в силу того, что винеровский процесс имеет модификацию с непрерывными траекториями, полагаем, что того же результата можно достичь, если первоначальный прыжок (с константой K_1) осуществляется как обычно, но его результат перед следующим скачком другой, поскольку относим его к другому промежутку времени. Таким образом, имеется как бы две временные шкалы. В одной шкале совершаются броуновские движения с константой K_1 , а в другой результаты броуновских скачков учитывают как случайные интервалы времени, так, чтобы, например, в некотором временном интервале результат был бы эквивалентен скачку с константой K_2 . Временная шкала совершения броуновского скачка Δ_1 равномерна, а сами прыжки случайны. Временная шкала эффективного результата таких скачков неравномерна и случайна. Случайный процесс, отвечающий неравномерной временной шкале, должен быть стационарным, иметь независимые положительные приращения и не иметь средней величины, иначе нельзя будет говорить о случайной временной шкале. То есть случайный процесс должен быть альфа-устойчивым с $0 < \alpha < 1$. Далее, предъявляя стандартные требования к указанному случайному процессу, нетрудно получить кинетическое уравнение для примесных атомов в сложной диэлектрической среде. В случае коллективного излучения примесных частиц как в сложных диэлектрических средах, так и в любых открытых системах динамика ансамбля примесных частиц описывается кинетическим уравнением для матрицы плотности примесных частиц. И как для любого кинетического уравнения, есть различные модели временной динамики, которые эффективно дают одно и то же уравнение. Наш подход также приводит к кинетическому уравнению с дробной производной по времени, однако оно отличается от известных в излучательных задачах и справедливо в силу нашего взгляда только для кооперативного излучения частиц в сложной диэлектрической среде. Однако надо подчеркнуть, что полученное уравнение описывает и обычное СИ как частный случай.

Мы математически оформили нашу интерпретацию в виде теории излучения ансамбля примесных

частиц как субординированного процесса, управляемого случайным процессом, включающим взаимодействие квантовой примесной частицы с вакуумным электромагнитным полем. Это, в свою очередь, приводит к построению кинетического уравнения для ансамбля возбужденных примесных частиц с дробной производной по времени. Подчеркнем, что изложенный физический механизм появления дробной производной и появление субординированного процесса для анализа излучения до сих пор не обсуждались в литературе, хотя дробные производные в излучательных задачах для описания процесса спонтанного излучения примесной частицы в «сложной» диэлектрической среде уже неоднократно рассматривались [8, 31–37].

В нашей интерпретации возможно как описание реальных прыжков одной квантовой примеси, так и рассмотрение ансамбля примесных частиц, а собственно неоднородным уширением спектральной линии можно в дальнейшем и пренебречь. Однако если мы говорим о прыжках примесей, то число частиц в ансамбле с единым квантовым состоянием, симметричным по перестановкам частиц, не может быть произвольно велико и зависит от интенсивности скачков частиц. Рассмотрение таких критических чисел ансамбля представляет отдельную задачу. В данной статье для определенности рассматриваем случай единого симметричного по перестановкам числа частиц квантового состояния. Другие пространственные особенности задачи «уходят» в спектральные особенности среды и отражаются лишь в порядке дробной производной. Режим субординации выходит за ограничения марковской теории, как и полученное уравнение с дробной производной по времени. По сравнению с традиционным СИ выявлены отличия — в зависимости от порядка дробной производной в импульсе СИ появляются дополнительные провал и временной сдвиг максимума интенсивности СИ, которые могут свидетельствовать в пользу представленного механизма СИ, хотя экспериментов по СИ в сложных диэлектрических средах авторам неизвестны. В теории дополнительный провал характеризует СИ ансамбля примесей из небольшого числа частиц. Также временной хвост импульса СИ, скорость его уменьшения существенно отличается от обычного случая СИ.

2. ВВЕДЕНИЕ ДРОБНОЙ ПРОИЗВОДНОЙ

Теория СИ вошла во многие учебники и монографии по квантовой оптике, а в многочисленных ста-

тях продемонстрированы разные подходы [38–46]. Также укажем работы авторов по невинеровскому сверхизлучению [47–50], в которых теория СИ развита до второго порядка по константе связи с электромагнитным вакуумным полем, тогда как обычная теория представляет собой теорию первого порядка по константе связи с электромагнитным вакуумным полем.

Будем рассматривать случай локализованного атомного ансамбля в сложной диэлектрической среде на основе результатов теории стандартного СИ ансамбля одинаковых двухуровневых частиц. Пусть только пара уровней $|E_1\rangle$ и $|E_2\rangle$ могут быть заселены и пусть они связаны оптически разрешенным переходом. Основные результаты теории обычного спонтанного излучения следуют из кинетического уравнения стандартного вида Линдблада [27, 51–53]:

$$\frac{d\rho^S}{dt} = \chi \left(R_- \rho^S R_+ - \frac{1}{2} R_+ R_- \rho^S - \frac{1}{2} \rho^S R_+ R_- \right), \quad (1)$$

$$R_- = |E_1\rangle\langle E_2|, R_+ = |E_2\rangle\langle E_1|,$$

$$R_3 = \frac{1}{2} (|E_2\rangle\langle E_2| - |E_1\rangle\langle E_1|),$$

$$[R_3, R_\pm] = \pm R_\pm, [R_+, R_-] = 2R_3.$$

Здесь χ — безразмерный множитель, пропорциональный константе связи атома с вакуумным окружающим полем.

Всякое кинетическое уравнение, в том числе и уравнение (1), может быть представлено/«распутано» (unravelling) как более элементарный, но случайный процесс. Например, к стандартному кинетическому уравнению (1) приводит уравнение Шредингера, записанное в виде стохастического дифференциального уравнения (СДУ) для апостериорного вектора состояния. Уравнение для случайной матрицы плотности, когда переход от одного состояния к другому определяется тем или иным случайным процессом, также дает при усреднении стандартное кинетическое уравнение [28–30]. В частности, кинетическое уравнение (1) может быть получено из стохастического уравнения Шредингера для атомного волнового вектора $|\Psi(t)\rangle$. Таких уравнений можно написать несколько, вкладывая разный смысл в управляющие ими случайные процессы. Для примера укажем такое СДУ, управляемое считывающим процессом $N(t)$ [30]:

$$d|\Psi(t)\rangle = \left[-\chi \frac{R_+ R_- - 1}{2} dt + (R_- - 1) dN(t) \right] |\Psi(t)\rangle, \\ \langle dN(t) \rangle^2 = dN(t), \quad \langle dN(t) \rangle = \chi dt.$$

Если ввести компенсированный пуассоновский процесс $\tilde{N}(t) = N(t) - \chi t$, а затем перейти к винеровскому процессу $W(t)$ с алгеброй Ито

$$(dW(t))^2 = dt, \quad dW(t) dt = dt dt = 0, \quad \langle W(t) \rangle = 0,$$

то СДУ, управляемое винеровским процессом,

$$d|\Psi(t)\rangle = \left[-\chi \left(\frac{R_+ R_- + 1}{2} \right) dt + \chi R_- dt + \sqrt{\chi} (R_- - 1) dW(t) \right] |\Psi(t)\rangle, \quad (2)$$

также приводит к кинетическому уравнению (1). В работе [30] также приведено и уравнение для стохастической матрицы плотности. Подчеркнем, что здесь дифференциалы понимаются в смысле Ито [54]. В нашей интерпретации χ — однородная ширина линии спонтанного излучения атома без учета особенностей сложной диэлектрической среды.

При таком представлении винеровский процесс описывает случайные изменения в квантовом состоянии, вызванные взаимодействием с квантованным электромагнитным полем. При дальнейшем стандартном представлении винеровского процесса это означает, что в фиксированные моменты $\tau_j = j\delta\tau$, $j = 0, 1, 2, 3, \dots$, происходят случайные скачки/изменения в населенности, вызванные взаимодействием с электромагнитным вакуумом. Это скачки броуновского движения (в случае (2)). В этом месте мы вводим предположение, отвечающее принятой нами картине процессов в сложных диэлектрических средах. Вследствие сложной структуры спектра сложных диэлектриков для частицы ансамбля примесей считаем, что само взаимодействие примеси с электромагнитным вакуумом и связанные с ним случайные скачки в населенности уровней примеси включаются в случайные моменты времени, разделенные случайными интервалами времени T_j .

При представлении/«распутывании» механизма неоднородного уширения частицы ансамбля возникает новый характерный масштаб времени — это характерная «длительность» τ_{Jump} временной динамики частицы, скачка частицы или ее параметров. В случайные моменты времени частица с новыми параметрами начинает взаимодействовать с вакуумным электромагнитным полем. Если $\chi\tau_{Jump} \gg 1$, то имеем обычную марковскую динамику.

Если $\chi\tau_{Jump} < 1$ или $\chi\tau_{Jump} \ll 1$, в задаче возникают два случайных процесса. Один из них дает стандартное «распутывание» кинетического уравнения по отношению случайности в процессах изменения в квантовом состоянии примеси, связанным со спонтанным излучением. Другой процесс «распутывает» неоднородное уширение спектральной линии примеси с учетом особенностей спектра линейных волн сложной диэлектрической среды.

В стационарном случае величины T_1, T_2, \dots представляют собой неотрицательные независимые одинаково распределенные (с плотностью вероятности $\varphi(t)$) случайные переменные. Эти величины должны характеризоваться некоторым α -устойчивым распределением, причем параметр α должен лежать в диапазоне $0 < \alpha < 1$, поскольку такой α -устойчивый процесс характеризует замену обычной временной шкалы в картине спонтанного излучения на случайную, но моделирующую именно временную направленность процессов.

В случае представления кинетического уравнения (1) винеровским СДУ (2) к моменту времени t случайные блуждания, связанные со спонтанным излучением, совершат не детерминированное число $1 + (t/\delta\tau)$ скачков, а некоторое случайное число $N(t)$, определяемое условием $N(t) := \max\{N : T(N) \leq t\}$, где $T(N) = \sum_{i=1}^N T_i$ — суммарное время ожидания N -го скачка.

Процесс $N(t)$ называют процессом восстановления [55–57]. Заметим, что разные авторы процессом восстановления называют несколько разные объекты.

Грубо говоря, $N(t) = \{N : T(N) = t\}$, и поэтому является обратной функцией к $T(N)$, т.е. $T(N(t)) = t$. В пределе $\delta\tau \rightarrow 0$ имеем следующие α -устойчивые процессы:

$$\left(\frac{1}{\delta\tau} \right)^{-1/\alpha} T \left(\frac{\tau}{\delta\tau} \right) \rightarrow U(\tau), \\ (\delta\tau)^\alpha N \left(\frac{t}{\delta\tau} \right) \rightarrow S(t) = \inf\{\tau : U(\tau) > t\}, \\ (\delta\tau)^{1/2} R \left(\frac{\tau}{\delta\tau} \right) \rightarrow X(\tau), \\ (\delta\tau)^{\alpha/2} R \left(N \left(\frac{t}{\delta\tau} \right) \right) \rightarrow \\ \rightarrow \{(\delta\tau)^\alpha\}^{1/2} R \left(N \left(\frac{t}{(\delta\tau)^\alpha} \right) \right) \rightarrow X(S(t)),$$

причем имеем свойство самоподобия $aS(t) = S(a^{1/\alpha}t)$ и $U(S(t)) = t$ (равенства по распределению).

Непрерывное случайное время $U(\tau)$, обратная величина $S(\tau) = \min\{\tau : U(\tau) \geq t\}$, существует, так как $U(\tau) \uparrow$ — монотонно возрастающая функция.

Вернемся к первоначально введенному случайному времени и запишем его как $T(\Theta)$, обратная величина $\Theta(t) = \min\{\tau : \Theta(\tau) \geq t\}$ (существует, так как $\Theta(\tau) \uparrow$). Введем плотность распределения вероятностей $g(\theta, t)$ для обратного времени $\Theta(t)$, θ — параметр. Поскольку $T(\Theta) < t \Leftrightarrow \Theta(t) \geq t$, имеем соотношения

$$F(t, \theta) = P(T(\Theta) < t) = P(\Theta(t) \geq \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} g(\theta', t) d\theta',$$

откуда

$$g(\theta, t) = -\frac{\partial}{\partial \theta} F(t, \theta) = -\frac{\partial}{\partial \theta} \int_{-\infty}^t f(t', \theta) dt',$$

$f(t, \theta)$ — плотность распределения вероятностей для $F(t, \theta)$. Поскольку $T(\theta)$ — неотрицательная величина, имеем

$$g(\theta, t) = -\frac{\partial}{\partial \theta} \int_0^t f(t', \theta) dt'.$$

Образ Лапласа для $f(t, \theta)$ есть $\hat{\rho}(s, \theta) = \exp(-\theta s^\alpha)$ [58]. Свойство самоподобия для $f(t, \theta)$ выражается равенством

$$f(t, \theta) = \frac{1}{\theta^{1/\alpha}} f\left(\frac{t}{\theta^{1/\alpha}}\right), \quad f(t) = f(t, 1).$$

С учетом предшествующего выражения для $g(\theta, t)$ получаем

$$g(\theta, t) = \frac{1}{t^\alpha} g\left(\frac{\theta}{t^\alpha}\right), \quad g(\theta) = \frac{1}{\alpha \theta^{1+1/\alpha}} f\left(\frac{1}{\theta^{1/\alpha}}\right).$$

Имеем также полезное для дальнейшего соотношение

$$\exp(-\theta s^\alpha) = \alpha \int_0^\infty \exp(-st) \frac{\theta}{t^{\alpha+1}} g\left(\frac{\theta}{t^\alpha}\right) dt.$$

Далее вычисляем моменты. Среднее $\langle T^\nu \rangle$ бесконечно для $\nu \geq \alpha$. Моменты $\langle \Theta^\nu \rangle$ конечны для всех $\nu > 0$. Умножая предыдущую формулу на $\theta^{\nu-1}$ и интегрируя по θ , получаем

$$\frac{\Gamma(\nu)}{s^{\alpha\nu}} = \alpha \langle \Theta^\nu \rangle \int_0^\infty \exp(-st) t^{\nu\alpha-1} dt = \alpha \langle \Theta^\nu \rangle \frac{\Gamma(\alpha\nu)}{s^{\alpha\nu}},$$

$$\langle \Theta^\nu \rangle = \int_0^\infty \theta^\nu g(\theta) d\theta = \frac{\Gamma(\nu)}{\alpha \Gamma(\alpha\nu)} = \frac{\Gamma(\nu+1)}{\Gamma(\alpha\nu+1)}.$$

Отсюда находим преобразование Лапласа

$$\hat{g}(s) = \langle \exp(-s\Theta) \rangle = \sum \frac{(-s)^n}{\Gamma(\alpha n + 1)} = E_\alpha(-s),$$

где

$$E_\alpha(z) = \sum \frac{z^n}{\Gamma(\alpha n + 1)}$$

— функция Миттаг-Леффлера. Окончательно,

$$\hat{g}(s, t) = E_\alpha(-st^\alpha).$$

Эти (в известном смысле [58–63] стандартные) манипуляции приводят к представлению процесса спонтанного излучения примесного ансамбля частиц в сложной диэлектрической матрице как подчиненного или субординированного случайного процесса. Говорят, что $X(S(t))$ является подчиненным к процессу $X(t)$ и направляется процессом $S(t)$, который называется направляющим. Направляющий процесс иначе называют рандомизированным операционным временем [59, 63].

Вероятностные характеристики направляющего процесса определяются следующими соображениями. Обозначим функцию плотности распределения вероятности для $U(\tau)$ через $p^T(t, \tau)$, а для $S(t)$ она дается $p^S(\tau, t)$. Тогда

$$p^S(\tau, t) = -\frac{\partial}{\partial \tau} \int_0^t p^T(t', \tau) dt'.$$

Для $S(t)$ получаем (угловые скобки — среднее)

$$\langle \exp(-\nu S(t)) \rangle = \sum_0^\infty \frac{(-\nu t^\alpha)^n}{\Gamma(1+n\alpha)} = E_\alpha(-\nu t^\alpha).$$

С учетом свойств функции Миттаг-Леффлера получаем плотность вероятности $S(t)$ в виде

$$p^S(\tau, t) = t^{-\alpha} M_\alpha\left(\frac{\tau}{t^\alpha}\right),$$

где введена M -функция Райта [29]¹⁾

¹⁾ Функция $M_\alpha(z)$ неотрицательна для $z \geq 0$ и нормируема, $\int_0^\infty M_\alpha(z) dz = 1$, с образом Лапласа $\mathcal{L}(M_\alpha(t, s)) = E_{\alpha,1}(-s)$. При $0 < \alpha \leq 1/2$ она монотонно убывает, а при $1/2 < \alpha < 1$ имеет максимум в некоторой точке, зависящей от α . Кроме того,

$$M_1(z) = \delta(z-1), \quad M_{1/2}(z) = \pi^{-1/2} \exp\left(-\frac{z^2}{4}\right),$$

$$M_{1/3}(z) = 3^{2/3} \text{Ai}\left(\frac{z}{3^{1/3}}\right),$$

$\text{Ai}(z)$ — функция Эйри.

$$M_\alpha(z) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{(-z)^k}{k! \Gamma(1 - \alpha - k\alpha)}.$$

В результате несложных вычислений, имея в виду винеровский процесс как броуновское движение с функцией распределения в виде

$$p^R(\tau, x) = (2\pi\tau)^{-1/2} \exp\left(-\frac{x^2}{2\tau}\right),$$

находим [61]

$$\mathcal{L}(p^r(t, x), s) = s^{\alpha-1} \mathcal{L}(p^R(t, x), s^\alpha),$$

$$p^r(t, x) = f(x) + \frac{1}{\Gamma(\alpha)} \int_0^t d\tau (t - \tau)^{\alpha-1} \frac{1}{2} \frac{\partial^2 p^r(\tau, x)}{\partial x^2}$$

или в эквивалентной форме, используя дробную производную Римана – Лиувилля,

$$\mathcal{D}_t^\alpha p^r(t, x) = \frac{f(x)t^{-\alpha}}{\Gamma(1 - \alpha)} = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 p^r(t, x)}{\partial x^2}. \quad (3)$$

Здесь $f(x)$ — начальное распределение.

Подчеркнем, что, говоря об изменении вероятности во времени, мы, по сути дела, рассуждаем на уровне кинетического уравнения. Для классических функций распределения это уравнение Фоккера – Планка, для квантовых квазивероятностей — обобщенное уравнение Фоккера – Планка, для матрицы плотности — просто кинетическое уравнение (или master equation). Во всех случаях меняется только производная по времени. Для рассматриваемого винеровского представления (2) уравнения (1) это означает, что уравнение (1) для рассмотренного процесса субординации следует записывать с дробной производной по времени ($0 < \alpha < 1$):

$$\mathcal{D}_t^\alpha \rho^S(t) = \chi \left(R_- \rho^S(t) R_+ - \frac{1}{2} R_+ R_- \rho^S(t) - \frac{1}{2} \rho^S(t) R_+ R_- \right). \quad (4)$$

Подчеркнем, что вид дробной производной в кинетическом уравнении для матрицы плотности ансамбля примесных атомов (4) отличается от вида дробной производной для примеси сложной диэлектрической среды, полученного и исследованного в работах [8, 37]. В работах [8, 25] параметр α определялся степенной зависимостью частоты вблизи особенностей спектра и условие $0 < \alpha < 1$ не требовалось. В нашем случае вследствие предложенного механизма перескока параметр α можно оценить как

$$\alpha \sim \left(\log(\tau_{Rel}) / \log(\tau_{Markov}) \right) - 1.$$

Здесь τ_{Rel} — время затухания возбуждения в рассматриваемом случае, τ_{Markov} — время затухания возбуждения в марковском случае $\alpha = 1$. Выписанная оценка согласуется с качественным рассмотрением и принятой нами моделью только при условии

$$1 < \left(\log(\tau_{Rel}) / \log(\tau_{Markov}) \right) < 2.$$

Есть отдельная задача связать параметр α с моделями спектра линейных волн в сложных диэлектрических средах и с механизмом неоднородного уширения.

Заметим также, что режим субординации, введенный для спонтанного коллективного излучения ансамбля примесей сложной диэлектрической матрицы, можно вводить на разных этапах и для разных уравнений, например для уравнений для диагональных матричных элементов (населенностей) матрицы плотности. В окончательных уравнениях это должно быть учтено начальными условиями.

3. ПРОЯВЛЕНИЕ ЭРИДИТАРНОСТИ В ИМПУЛЬСЕ СВЕРХИЗЛУЧЕНИЯ АТОМНОГО АНСАМБЛЯ

Перепишем уравнение (4) с другим определением дробной производной:

$$\frac{d[\rho^S(\tau)]^\alpha}{d\tau^\alpha} = \left(R_- \rho^S(\tau) R_+ - \frac{1}{2} R_+ R_- \rho^S(\tau) - \frac{1}{2} \rho^S(\tau) R_+ R_- \right), \quad (5)$$

$$\frac{df^\alpha}{d\tau^\alpha} = \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{f(\tau + \epsilon\tau^{1-\alpha}) - f(\tau)}{\epsilon}, \quad (6)$$

которое при $\alpha = 1$ соответствует производной в традиционном понимании. При записи (5) осуществлен переход к новому безразмерному времени $\tau = \chi t$. В отличие от известных фрактальных производных Римана – Лиувилля, Капуто, Грюнвальда – Летникова, введенная соотношением (6) производная [64] $T_\alpha f = df^\alpha / d\tau^\alpha$ обладает, например, следующими особенностями:

$$\begin{aligned} T_\alpha C &= 0, \quad C = \text{const}, \\ T_\alpha \tau^p &= p\tau^{p-\alpha}, \\ T_\alpha(f(\tau)) &= \tau^{1-\alpha} \frac{df}{d\tau}. \end{aligned} \quad (7)$$

Обсуждаемая фрактальная производная, в отличие от других фрактальных производных, характеризуется обычными правилами определения производных суммы, произведения и частного двух функций.

Решение с ее помощью задач по определению функции одной переменной может представлять явный вид искомого выражения в аналитическом виде.

Будем интересоваться зависимостью интенсивности $I(t)$ импульса кооперативного излучения ансамбля атомов от времени, которую традиционно определим скоростью изменения среднего значения разности заселенностей системы:

$$I(t) = -\hbar\omega_0 \frac{d\langle R_3(t) \rangle}{dt}, \quad (8)$$

где ω_0 — частота рабочего перехода двухуровневого атома, а среднее значение оператора R_3 понимается как квантовое среднее по матрице плотности всего коллектива атомов $\langle R_3(t) \rangle = \text{Sp}(R_3\rho(t))$. Здесь мы вернулись к традиционному пониманию представления результатов в размерном времени.

Мы использовали симметризованный по всем возможным перестановкам состояний атомной системы базис Дике. Его базисные функции $|r, m\rangle$ образуют $(2r + 1)$ -мерное представление алгебры момента с генераторами R_3 и R^\pm ,

$$R^\pm|r, m\rangle = \sqrt{(r \mp m)(r \pm m + 1)}|r, m \pm 1\rangle,$$

являясь собственными векторами операторов Казимира

$$R^2 = \frac{1}{2}(R^+R^- + R^-R^+) + R_3^2$$

и инверсии R_3 :

$$R^2|r, m\rangle = r(r + 1)|r, m\rangle, \quad R_3|r, m\rangle = m|r, m\rangle.$$

Будем анализировать стандартную ситуацию излучения атомным ансамблем из $N_p = 2r$ полностью возбужденных атомов. Такое состояние отвечает вектору $|N_p/2, N_p/2\rangle$ начального состояния системы. Оператор R^2 является интегралом движения, сохраняя в процессе эволюции свое среднее $\langle R^2 \rangle = (N_p/2)(N_p/2 + 1)$ по начальному состоянию. Обозначим среднее значение разности заселенностей функцией $y(\tau) = \langle R_3(\tau) \rangle$ с начальным значением $y(0) = N_p/2$ и пренебрежем флуктуациями разностей заселенности. Для последней будем считать, что $\langle R_3^2(\tau) \rangle \approx \langle R_3(\tau) \rangle^2$. Следует особо отметить, что такое приближение означает достаточное число атомов в ансамбле $N_p \gg 1$, поскольку именно в этом случае реализуется указанное выше приближение. Тогда из (5) следует известное уравнение Рикатти, описывающее динамику разности заселенностей:

$$\frac{dy^\alpha}{d\tau^\alpha} = y^2 - y - \frac{N_p}{2} \left(\frac{N_p}{2} + 1 \right), \quad (9)$$

с постоянными коэффициентами и производной в левой части, понимаемой в смысле определения (6). Общее решение (9) можно представить как сумму частного решения \mathcal{B} и некоторой другой функции $u(\tau)$:

$$y(\tau) = \mathcal{B} + \frac{1}{u(\tau)}. \quad (10)$$

Решением в виде \mathcal{B} может выступать постоянная, поэтому, пользуясь соотношениями (7), для ее определения имеем квадратное уравнение, корни которого

$$\mathcal{B} = \left(\frac{1}{2}(N_p + 2), -\frac{N_p}{2} \right)$$

приводят к решению одного и того же вида. Подставляя решение (10) в уравнение (9) и вновь используя соотношения (7), приведем окончательный вид искомой функции разности заселенностей для заданного начального условия:

$$y(\tau) = \frac{1}{2} + \frac{N_p + 1}{2} \frac{N_p - \exp \Theta_\alpha}{N_p + \exp \Theta_\alpha}. \quad (11)$$

Производная найденной функции и определяет вид выражения для интенсивности импульса излучения в случае фрактальной динамики системы:

$$I(\tau) = -\hbar\omega_0 \frac{(N_p + 1)^2}{2} \tau^{\alpha-1} \frac{2N_p \exp \Theta_\alpha}{(N_p + \exp \Theta_\alpha)^2}. \quad (12)$$

В этих выражениях $\Theta_\alpha = (N_p + 1)\tau^\alpha/\alpha$. Полученные выражения обладают свойством нелокальности или эридитарности. Действительно, при $\alpha = 1$ выражения (11) и (12) переходят в известные выражения

$$y(t) = \frac{1}{2} - \frac{N_p + 1}{2} \text{th} \left(\frac{\chi}{2}(N_p + 1)(t - t_0) \right), \quad (13)$$

$$I(t) = -\hbar\omega_0 \chi \frac{(N_p + 1)^2}{4} \times \times \text{sch}^2 \left(\frac{\chi}{2}(N_p + 1)(t - t_0) \right) \quad (14)$$

для среднего от разности заселенностей и интенсивности в импульсе сверхизлучения изначально полностью возбужденного атомного ансамбля. Эти выражения во избежание путаницы приведены для размерного времени. В них также введено время задержки

$$t_0 = (\chi(N_p + 1))^{-1} \ln N_p, \quad (15)$$

которое определяет время, в течение которого полностью возбужденный ансамбль переходит в полу-возбужденное состояние $|N_p/2, 0\rangle$, а заселенности рабочих уровней в этой ситуации выравниваются.

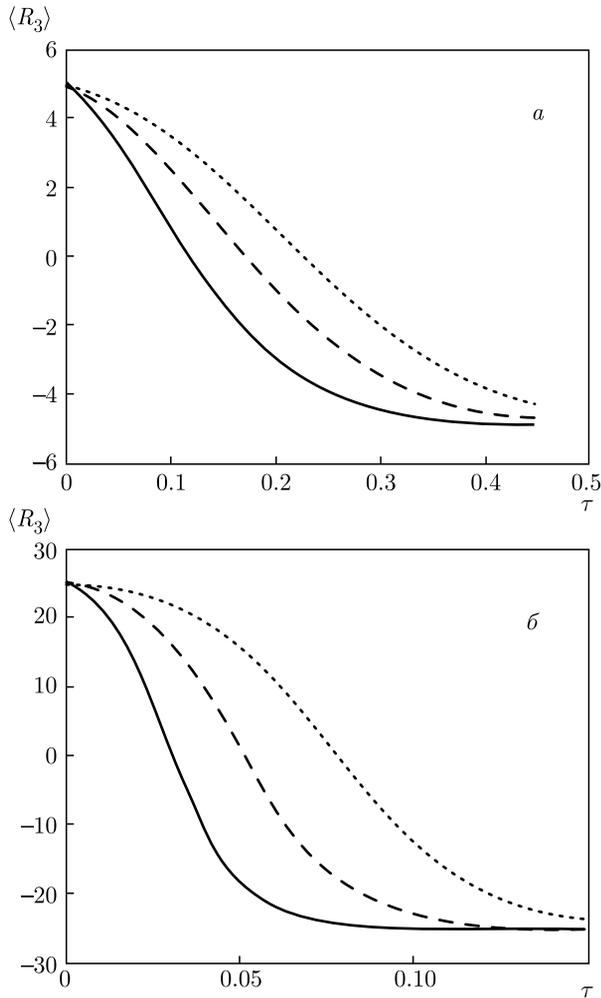


Рис. 1. Графики временных зависимостей разности заселенностей рабочих уровней кооперативной системы для $N_{p,1} = 10$ (а) и $N_{p,2} = 50$ (б) атомов. Кривые отвечают следующим значениям параметра фрактальности: 1 — пунктирные кривые, 0.9 — штриховые, 0.8 — сплошные

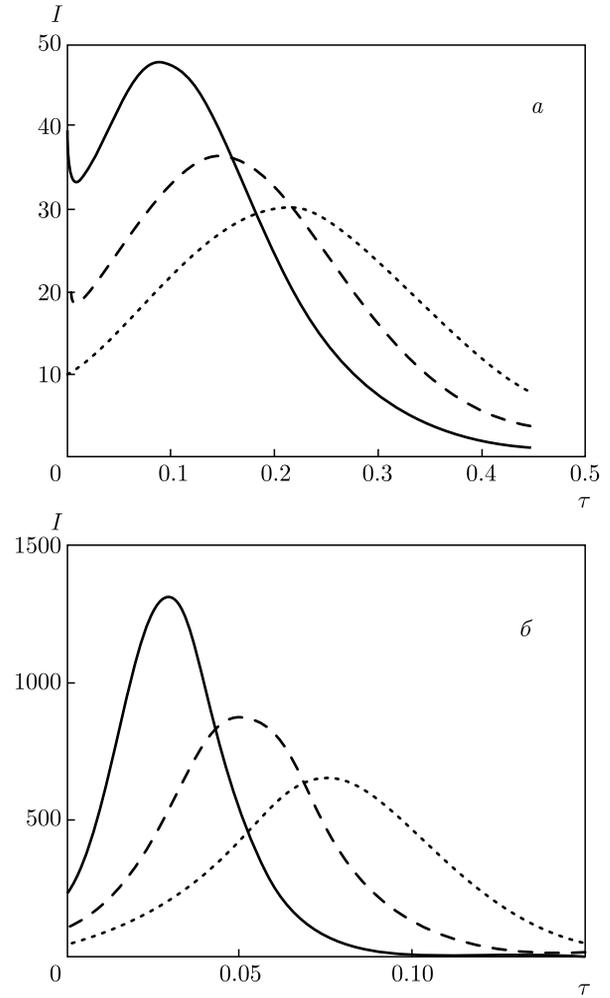


Рис. 2. Временные зависимости импульсов сверхизлучения для атомных систем с числом атомов $N_{p,1} = 10$ (а) и $N_{p,2} = 50$ (б). Кривые отвечают следующим значениям параметра фрактальности: 1 — пунктирные кривые, 0.9 — штриховые, 0.8 — сплошные

Проведем исследование наблюдаемых временных характеристик, в качестве которых выступают кооперативная населенность и интенсивность импульса сверхизлучения в зависимости от параметра фрактальности или значения величины дробной производной. Напомним, что уравнение Рикатти, описывающее сверхизлучение, получено в приближении, когда число атомов ансамбля относительно велико. В исходном уравнении (8) мы пренебрегли различием средних значений квадрата оператора разности заселенностей $\langle R_3^2 \rangle$ и квадрата среднего $\langle R_3 \rangle^2$, а следовательно, его флуктуациями. Будем исследовать обсуждаемые режимы, когда число атомов в системе равно $N_{p,1} = 10$ и $N_{p,2} = 50$.

На рис. 1 представлены зависимости среднего значения оператора разности заселенностей $\langle R_3(\tau) \rangle$ атомного ансамбля при разных значениях фрактального параметра α . Из графиков следует, что увеличение значения этого параметра приводит к увеличению эффективной скорости релаксации ансамбля, при этом сама функция остается монотонно убывающей. Изменение масштаба как временной шкалы, так и самой анализируемой величины связано с учетом их зависимости от числа атомов в ансамбле.

Напротив, в зависимости интенсивности $I(\tau)$ импульса сверхизлучения от времени существенно проявляется фрактальный параметр. Из рис. 2 видно, что независимо от числа атомов в ансамбле, для слу-

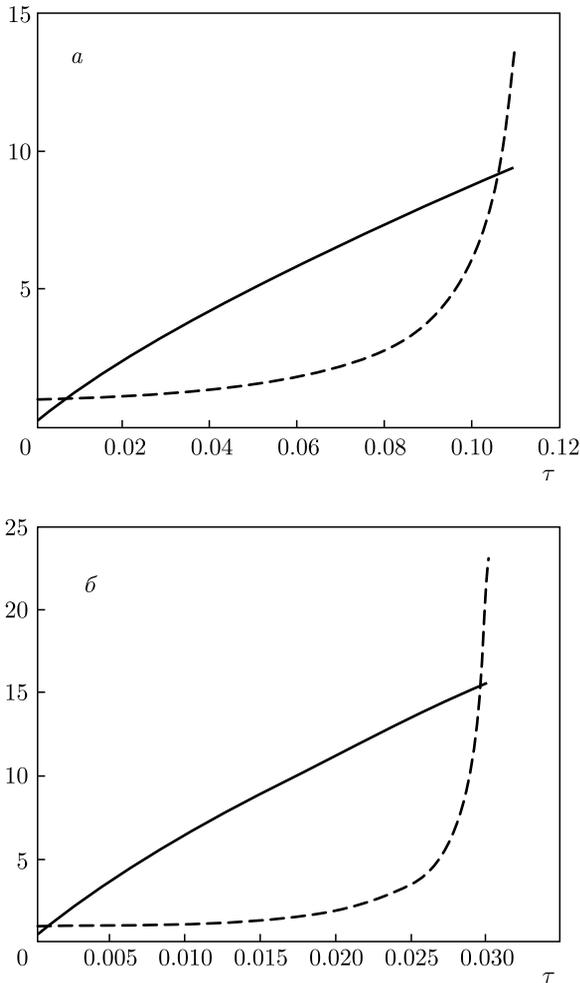


Рис. 3. Решение трансцендентного уравнения (16) при значении параметра фрактальности $\alpha = 0.8$ для атомных систем с числом атомов $N_{p,1} = 10$ (а) и $N_{p,2} = 50$ (б). Точки пересечения кривых — корни уравнения, определяющие экстремальные значения интенсивности импульса сверхизлучения. Сплошные кривые — правая часть уравнения, штриховые — левая

чая излучения системы при взаимодействии с обычным широкополосным вакуумом (кривые, определенные точками на графиках) наблюдается максимум интенсивности, он единственный и определен временем задержки $\tau_0 = \chi t_0$ импульса сверхизлучения согласно уравнению (15). Этот промежуток времени, в течение которого возбужденный ансамбль переходит в полувозбужденное состояние. Уменьшение параметра α до некоторого критического значения, разного для разных ансамблей, приводит к появлению характерного провала — минимума на начальном этапе развития импульса (пунктирные и сплошные кривые графиков). Именно эта особен-

ность характеризует проявление субординации в кооперативном излучении ансамблем с симметричным по перестановкам частиц начальным квантовым состоянием. Здесь можно было бы говорить о своеобразном фрактальном вакууме, но это лишь игра слов. Экстремальные значения времен определены следующим параметрическим уравнением:

$$\frac{N_p + 1}{1 - \alpha} \tau^\alpha = \frac{N_p + \exp \Theta_\alpha}{N_p - \exp \Theta_\alpha}. \quad (16)$$

Его решение представлено в графическом виде на рис. 3. Здесь штриховые кривые определяют поведение правой части равенства (16), а сплошные — его левой части. Точки пересечения кривых и определяют характерные экстремальные времена на графиках временной зависимости импульса интенсивности кооперативного излучения системы. Отметим, что уравнение (16) естественно сводится к виду (15) при $\alpha = 1$. Наконец, при дальнейшем уменьшении фрактального параметра кривые, характеризующие трансцендентное уравнение, перестают пересекаться, что и продемонстрировано на рис. 4 как отсутствие корней обсуждаемого уравнения, и импульс излучения перестает обладать какими-либо особенностями. Он теперь характеризуется монотонно убывающей кривой, как в случае коллективного излучения возбужденного ансамбля сфазированных классических осцилляторов.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе предложено физическое обоснование появления субординированного процесса для описания кооперативного спонтанного излучения в сложных диэлектрических средах и в качестве примера рассмотрен простой случай кооперативного излучения нескольких примесных частиц. Выделим три аспекта предложенного подхода к исследованию коллективного излучения примесных частиц в сложных диэлектрических средах.

Первый аспект состоит в использовании «распутьвания» распределения примесных атомов по частотам и замене распределения на временную динамику примесных частиц, состоящей в случайном изменении параметров и/или положения и параметров частиц. Это привело к необходимости использования субординированных процессов, которые дают новый взгляд на старую проблему излучения частиц в диэлектрических средах. Сам вопрос о границах, в которых такое рассмотрение не только возможно, но и необходимо, частично решается рассмотрением спектральных особенностей линейных

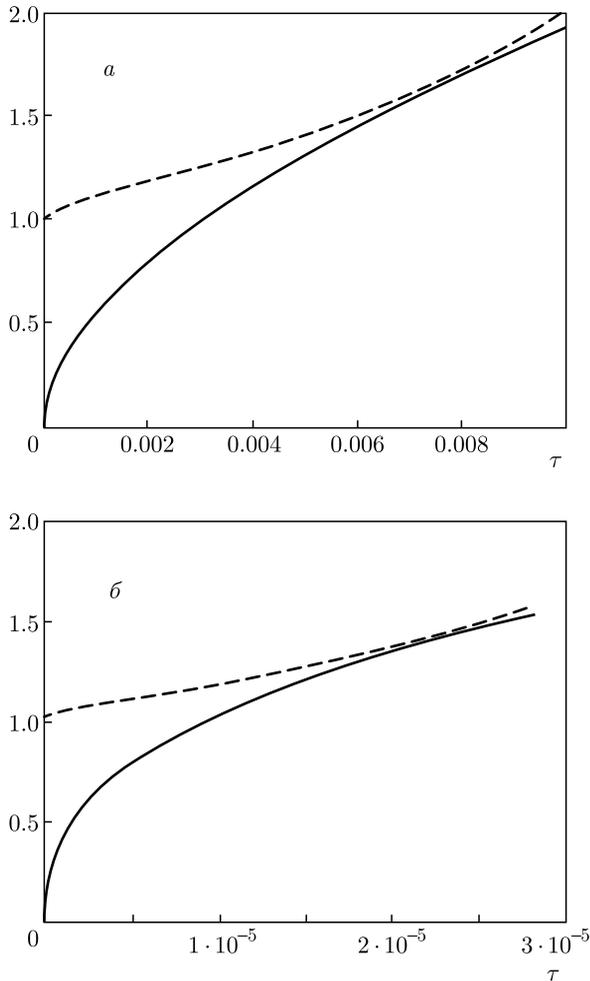


Рис. 4. У трансцендентного уравнения (16) отсутствуют решения при значениях фрактального параметра $\alpha = 0.555$ и меньших для атомной системы с числом атомов $N_{p,1} = 10$ (а) и при значениях $\alpha = 0.38$ и меньших для атомной систем с числом атомов $N_{p,2} = 50$ (б). Сплошные кривые — правая часть уравнения, штриховые — левая

волн в сложных диэлектрических средах. Однако возникает целый ряд новых задач по рассмотрению излучения примесных частиц, которые в сложных диэлектрических средах демонстрируют прыжковое поведение и различные взаимодействия с дефектами и самой средой. При этом отдельным вопросом является учет пространственной динамики примесных частиц. Использование субординации в некотором смысле в предложенном подходе оказалось простым — в кинетических уравнениях обычной теории проводится лишь замена обычной производной по времени на дробную производную.

Второй аспект предложенного подхода состоит в способе работы с динамическими уравнениями, в

которых параметры взаимодействия зависят от частот, времени (смотря какую форму слагаемых уравнения использовать). Известно, что стандартному марковскому приближению отвечает пренебрежение зависимостью параметров взаимодействия от частот. Тогда в одном из подходов к теории открытых систем удастся ввести основные стохастические процессы и представить уравнение Шредингера, например, как квантовое или классическое стохастическое дифференциальное уравнение типа (2). Случайная зависимость параметров этого уравнения от времени или частоты, например, параметра χ , приводит к ситуации, когда в коэффициент у дифференциала Ито одного случайного процесса мультипликативно входит дифференциал Ито другого случайного процесса. Один из вариантов возникновения такой ситуации в марковском случае рассмотрен в работе [65]. В общем случае, однако, ситуация немарковская, и в данной статье предлагается иной и весьма общий подход — один из указанных процессов рассматривать как субординатор. Получается в некотором смысле вполне канонический подход, который требует дальнейшего изучения с точки зрения и получения конкретных результатов, и определения границ необходимости такого подхода.

Третий аспект связан с учетом пространственных особенностей. Первоначально теория сверхизлучения относилась к локализованному атомному ансамблю и строилась как линейная (по параметру взаимодействия с квантованным электромагнитным вакуумом) теория. Линейность здесь понимается в смысле алгебраической теории возмущений [66], эквивалентной суммированию целого ряда обычной теории возмущений. Такой «линейный» подход в резонансной физике более известен как приближение вращающейся волны. Выход за рамки приближения вращающейся волны активно обсуждается, однако еще со времен монографии [67] считается, что поправки второго порядка по взаимодействию с квантованным электромагнитным вакуумом не дают вклада в кинетическое уравнение и, соответственно, не влияют на картину сверхизлучения в обсуждаемом контексте. В работах [47–50] учет антивращающихся слагаемых проведен в рамках алгебраической теории возмущений как учет слагаемых, квадратичных по параметру взаимодействия с квантованным электромагнитным вакуумом. Показано, что картина сверхизлучения Дике резко меняется — в зависимости от числа атомов ансамбля возникает эффект стабилизации возбужденных атомов по отношению к коллективным процессам излучения. Однако этот результат получен для модели возбуж-

денных одинаковых атомов, локализованных в пространстве в области, размеры которой много меньше длины волны излучения. Проблема учета пространственного распределения для СИ актуальна, поскольку СИ является нежелательным эффектом в системах многокубитной квантовой памяти, а обнаруженный в работах [47–50] эффект стабилизации дает способ его устранения.

Если пространственное распределение учитывать непосредственно введением координат атомов, то на этом пути не удастся ввести основные квантовые случайные процессы, свойства которых обеспечили бы явное суммирование рядов в формальном решении уравнения Шредингера и привели бы к эффекту стабилизации возбужденного состояния атомного ансамбля. Другой путь был предложен в работе [65]. Наша статья делает шаг для поиска решения проблемы учета пространственного распределения атомов ансамбля в направлении введения субординированных процессов.

Подчеркнем, что предложенное в статье введение субординированного процесса позволяет строить основное кинетическое уравнение системы в рамках марковского приближения и с использованием мощного аппарата стохастических дифференциальных уравнений. Последующее распутывание кинетического уравнения с помощью классического винеровского процесса позволяет перейти на язык кинетических уравнений для вероятностей и квазивероятностей. После этого немарковость определяется введением рандомизированного времени, которое меняет лишь моменты совершения скачков броуновского движения и отражается лишь на замене временной производной кинетического уравнения на дробную производную. Физические процессы изменения моментов времени совершения случайных скачков броуновского движения могут быть самыми разнообразными и необходима более детальная проработка возникающих здесь связей.

Наконец отметим, что с точки зрения кооперативного излучения в нашей статье использовано простое предположение, что состояние ансамбля примесей симметрично по перестановке частиц. В форме линии импульса СИ это отразилось в наличии провала, но для небольшого числа частиц ансамбля. Предположение о наличии иных состояний, например антисимметричных по перестановкам частиц, должно приводить к перепутыванию квантовых состояний [68] аналогично обычному случаю, но это еще более усложняет ситуацию спонтанного излучения в сложных диэлектрических средах.

Финансирование. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант № 19-02-00234а).

ЛИТЕРАТУРА

1. L. Pavesi and M. Ceschini, *Phys. Rev. B* **48**, 17625 (1993).
2. R. Rohlsberger, K. Schlage, T. Klein, and O. Leupold, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 097601 (2005).
3. C. Rothe, S. I. Hintschich, and A. P. Monkman, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 163601 (2006).
4. J. Linnros, N. Lalic, A. Galeckas, and V. Grivickas, *J. Appl. Phys.* **86**, 6128 (1999).
5. M. D. Tocci, M. Scalora, M. J. Bloemer, J. P. Dowling, and C. M. Bowden, *Phys. Rev. A* **53**, 2799 (1996).
6. P. Lodahl et al., *Nature* **430**, 654 (2004).
7. I. Thanopoulos, V. Karanikolas, N. Iliopoulos, and E. Paspalakis, *Phys. Rev. B* **99**, 195412 (2019).
8. Jing-Nuo Wu, Chih-Hsien Huang, Szu-Cheng Cheng, and Wen-Feng Hsieh, *Phys. Rev. A* **81**, 023827 (2010).
9. Wei-Min Zhang, Ping-Yuan Lo, Heng-Na Xiong, Matisse Wei-Yuan Tu, and Franco Nori, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 170402 (2012).
10. K. Sinha, P. Meystre, E. A. Goldschmidt, F. K. Fatemi, S. L. Rolston, and P. Solano, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 043603 (2020).
11. R. Kohlrausch, *Ann. Phys. Lpz.* **12**, 353 (1847).
12. F. Alvarez, A. Alegria, and J. Colmenero, *Phys. Rev. B* **44**, 7306 (1991).
13. K. Funke, *Solid State Ionics* **40–41**, 200 (1990).
14. E.-J. Donth, *The Glass Transition: Relaxation Dynamics in Liquids and Disordered Materials*, Springer-Verlag, Berlin (2001).
15. A. Jedrzejowska et al., *Phys. Rev. E* **101**, 010603(R) (2020).
16. G. R. Kneller and M. Saouessi, *J. Phys. A* **53**, 20LT01 (2020).
17. Y. Luchko, *Mathematics* **8**, 1561 (2020).

18. D. Boyanovsky, D. Jasnow, X.-L. Wu, and R. C. Co-alson, *Phys. Rev. A* **100**, 043617 (2019).
19. R. Tan, X. Xu, and D. Poletti, *Phys. Rev. A* **101**, 023603 (2020).
20. A. Kaminska and T. Srokowski, *Phys. Rev. E* **97**, 062120 (2018).
21. K. Fujimoto, R. Hamazaki, and M. Ueda, *Phys. Rev. Lett.* **120**, 073002 (2018).
22. R. Bouganne, M. B. Aguilera, A. Ghermaoui, J. Beugnon, and F. Gerbier, *Nature Phys.* **16**, 21 (2020).
23. W. Berdanier, J. Marino, and E. Altman, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 230604 (2019).
24. Md. Sariful Sheikh et al., *Thin Solid Films* **638**, 277 (2017).
25. R. Metzler and J. Klafter, *J. Non-Cryst. Sol.* **305**, 81 (2002).
26. А. М. Башаров, *ЖЭТФ* **116**, 469 (1999).
27. C. W. Gardiner and P. Zoller, *Quantum Noise*, Springer-Verlag, Berlin (2000), (2004).
28. P. Warszawski and H. M. Wiseman, *J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt.* **5**, 1 (2003).
29. P. Warszawski and H. M. Wiseman, *J. Opt. B: Quantum Semiclass. Opt.* **5**, 15 (2003).
30. А. М. Башаров, *Письма в ЖЭТФ* **109**, 699 (2019).
31. G. L. Lippi, *Atoms* **9**, 6 (2021).
32. L. Lu and X. Yu, *Laser Phys. Lett.* **14**, 115202 (2017).
33. J. F. Gomez Aguilar, K. M. Saad, and D. Baleanu, *Opt. Quant. Electron.* **51**, 316 (2019).
34. A. N. Pisarchik and R. Jaimes-Reategui, *Phys. Lett. A* **374**, 228 (2009).
35. Y. O. Barmenkov et al., *J. Appl. Phys.* **106**, 1 (2009).
36. A. D. Guzman-Chavez, Y. O. Barmenkov, and A. V. Kir'yanov, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 1 (2008).
37. C. H. Huang, J. N. Wu, Y. Y. Li, S. C. Cheng, and W. F. Hsieh, *Phys. Rev. A* **84**, 013802 (2011).
38. M. G. Benedict, A. M. Ermolaev, V. A. Malyshev, I. V. Sokolov, and E. D. Trifonov, *Super-Radiance: Multiatomic Coherent Emission*, Institute of Physics Publ., Bristol, UK (1996).
39. А. В. Андреев, В. И. Емельянов, Ю. А. Ильинский, *Кооперативные явления в оптике. Сверхизлучение. Бистабильность. Фазовые переходы*, Наука, Москва (1988).
40. Y. Luo et al., *Phys. Rev. Lett.* **122**, 233901 (2019).
41. P. Kirton and J. Keeling, *Phys. Rev. Lett.* **118**, 123602 (2017).
42. N. Shammah, N. Lambert, F. Nori, and S. De Liberato, *Phys. Rev. A* **96**, 023863 (2017).
43. P. Weiss, A. Cipris, R. Kaiser, I. M. Sokolov, and W. Guerin, *Phys. Rev. A* **103**, 023702 (2021).
44. И. В. Рыжов и др., *ЖЭТФ* **151**, 803 (2017).
45. Д. Я. Байрамдурдыев и др., *ЖЭТФ* **158**, 269 (2020).
46. S. J. Masson et al., *Phys. Rev. Lett.* **125**, 263601 (2020).
47. А. М. Башаров, *Phys. Rev. A* **84**, 013801 (2011).
48. А. М. Башаров, *ЖЭТФ* **158**, 978 (2020).
49. А. М. Башаров, А. И. Трубилко, *ЖЭТФ* **155**, 654 (2019).
50. А. М. Башаров, А. И. Трубилко, *ЖЭТФ* **155**, 425 (2019).
51. А. С. Холево, в сб. *Итоги науки и техники. Совр. пробл. математики. Фунд. направления*, ВИНТИ, Москва **83**, 3 (1991).
52. А. М. Chebotarev, *Lectures on Quantum Probability*, Sociedad Mathematica Mexicana (2000).
53. Х.-П. Бройер, Ф. Петруччионе, *Теория открытых квантовых систем*, Институт компьютерных исследований, Москва (2010).
54. К. В. Гардинер, *Стохастические методы в естественных науках*, Мир, Москва (1986).
55. А. А. Боровков, *Обобщенные процессы восстановления*, РАН, Москва (2020).
56. Б. А. Севастьянов, в сб. *Итоги науки и техники. Сер. Теор. вероятн. Мат. стат. Теор. кибернет.*, ВИНТИ, Москва **11**, 99 (1974).
57. Д. Кокс, В. Смит, *Теория восстановления*, Сов. радио, Москва (1967).
58. J. Bertoin, *Levy Processes*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (1996).
59. J. Bertoin, *Lect. Notes Math.* **1717**, 1 (1999).

60. M. Winkel, *Ann. Probab.* **30**, 382 (2002).
61. А. А. Станиславский, *ТМФ* **138**, 491 (2004).
62. А. А. Stanislavsky, *Phys. Rev. E* **70**, 051103 (2004).
63. А. А. Stanislavsky and A. Weron, *Phys. Rev. E* **101**, 052119 (2020).
64. R. Khalil, M. al Horani, A. Yousef, and M. Sababheh, *J. Comp. Appl. Math.* **264**, 65 (2014).
65. А. М. Башаров, *ЖЭТФ* **153**, 375 (2018).
66. A. I. Maimistov and A. M. Basharov, *Nonlinear Optical Waves*, Kluwer Acad., Dordrecht (1999).
67. К. Блум, *Теория матрицы плотности и ее приложения*, Мир, Москва (1983).
68. А. М. Башаров, *ЖЭТФ* **121**, 1249 (2002).

КАК ОБНАРУЖИТЬ ЛЕГЧАЙШИЙ ГЛЮБОЛ

М. А. Вронский^{a,b}, Б. П. Косяков^{a,c}, Е. Ю. Попов^a*

^a *Российский федеральный ядерный центр — ВНИИЭФ
607188, Саров, Нижегородская обл., Россия*

^b *Саровский физико-технический институт
607190, Саров, Нижегородская обл., Россия*

^c *Московский физико-технический институт
141700, Долгопрудный, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 28 января 2021 г.,
после переработки 19 апреля 2021 г.
Принята к публикации 21 апреля 2021 г.

Предложен способ обнаружения легчайшего глюбола в лобовом столкновении фотонов при энергии в системе центра инерции 1.3–2 ГэВ. Феноменологическим обоснованием служит недавнее экспериментальное открытие рассеяния света на свете в опытах на Большом адронном коллайдере. С учетом этого открытия сечение рождения легчайшего глюбола в $\gamma\gamma$ -столкновении составляет приблизительно 60 нб. Доминирующей модой распада легчайшего глюбола, предсказанной на основе калибровочно-гравитационной дуальности, оказывается распад на пару нейтральных векторных мезонов $\rho^0\rho^0$. Так как ρ^0 распадается на $\pi^+\pi^-$, то при энергии в системе центра инерции, равной массе легчайшего глюбола, следует ожидать резкого усиления выхода $\pi^+\pi^-\pi^+\pi^-$. Этот факт будет однозначным сигналом обнаружения легчайшего глюбола.

DOI: 10.31857/S0044451021080046

1. ВВЕДЕНИЕ

Адроны, не содержащие кварков и состоящие из одних глюонов, были предсказаны на заре развития квантовой хромодинамики (КХД) – современной теории сильных взаимодействий [1–4]. В истекшие полвека велся настойчивый поиск таких частиц, ныне известных как глюболы. Но усилия пока не увенчались успехом; существование глюболов с определенностью в эксперименте не установлено [5, 6]. Почему? Может быть, глюболов вообще нет в природе? Сегодня преобладает другая точка зрения [7–11]: поле глюбола перемешивается с полями кварков и антикварков, $(u\bar{u} + d\bar{d})/\sqrt{2}$ и $s\bar{s}$, образуя экспериментально наблюдаемые мезонные резонансы.

Впрочем, мнение о неизбежности перемешивания глюболов и кварков разделяют не все. Например, авторы работ [12–14] утверждают, что кварк-глюонная плазма, образующаяся в реляти-

вистских столкновениях тяжелых ионов, является средой, благоприятной для рождения глюболов в чистом виде. Для проверки этой идеи мы должны уметь идентифицировать треки распадов глюбола на фоне многих тысяч посторонних треков, характерных для разлета капли кварк-глюонной плазмы. А это непростая задача. Множественность рождения глюболов, оцениваемая в работе [15] из анализа (Pb + Pb)-столкновений при различных энергиях на Большом адронном коллайдере (БАК), составляет 1.5–4 глюбола на одно лобовое столкновение.

В настоящей работе предлагается иной способ обнаружения глюбола в чистом виде. Конкретно, речь идет о легчайшем глюболе — бесцветном связанном состоянии двух глюонов с нулевым полным моментом импульса и положительными четностью и зарядовой четностью, $J^{PC} = 0^{++}$. Будем обозначать эту частицу символом \mathbb{G} . Для нее, как указывалось уже в пионерских работах [1–4], в принципе допустим распад на два фотона с противоположными поляризациями. Обращая этот процесс во времени, мы получаем один из способов рождения легчайшего глюбола в чистом виде: $\gamma + \gamma \rightarrow \mathbb{G}$. Мы

* E-mail: kosyakov.boris@gmail.com

опишем и попытаемся практически и феноменологически обосновать эту идею в разд. 2. Однако наиболее серьезная теоретическая проблема состоит в предсказании продуктов распада \mathbb{G} . Этому посвящен разд. 3.

В отличие от кварка, глюон электронеutralен и обладает нулевыми значениями констант связи слабого изоспина и слабого гиперзаряда. Поэтому \mathbb{G} не вступает ни в электромагнитные, ни в слабые взаимодействия. Таким образом, следует ожидать, что за распад \mathbb{G} отвечает сильное взаимодействие. Иначе говоря, глюбол испытывает деконфайнмент, расщепляясь на два глюона. Здесь мы вступаем в область низких энергий, где бегущая константа связи КХД $\alpha_s(\mu)$ велика, и теория возмущений неприменима. Приведем три основных способа описания явлений в этой области:

- 1) квазиклассический подход,
- 2) моделирование КХД на решетках,
- 3) калибровочно-гравитационная дуальность.

Согласно устоявшейся квазиклассической картине кварки, связанные в адронах, предстают в виде точечных частиц, соединенных тонкими трубками, внутри которых заключен весь поток глюонного поля. Нуклоны — бесцветные объекты, состоящие из трех валентных кварков. Считается, что они удерживаются в ядрах остаточными цветными силами, вроде мультипольных сил Ван дер Ваальса между молекулами. Между тем возможность придать точный смысл понятию остаточных цветных сил оказывается довольно проблематичной [16]. Поэтому в ядерной физике продолжает господствовать юкавский механизм ядерных сил, представляющий собой механизм мезонных обменов, но с новым техническим оснащением — спонтанно нарушенной киральной симметрией, эффективными лагранжианами, разложением по производным [17–19]. Впрочем, описание ядра в терминах кварков остается насущной повесткой дня в стратегии развития КХД. Мы не останавливаемся на попытках решения этой задачи в рамках различных квазиклассических подходов (мешки, потенциальные модели), адресуя интересующегося читателя к работе [20] и содержащимся в ней ссылкам.

Существенный заслон квазиклассическому описанию глюбола ставит теорема Коулмена [21], согласно которой не существует локализованных (солитоноподобных) решений с конечной энергией в чистой янг-миллсовской теории. Строго говоря, мы лишены наглядного образа глюбола как локализованного объекта; нам не известны ни его размер, ни

структура. Из-за отсутствия центров взаимопоглощаемых цветных полей понятие остаточных цветных сил, отвечающих за взаимодействие глюбола с окружающей средой, становится совсем уж надуманным. В итоге мы вынуждены констатировать, что легчайший глюбол вообще не взаимодействует с окружающей средой как связанное адронное состояние — до его расщепления на два глюона.

Вычисления на решетке (и по правилам сумм) предсказывают массу легчайшего глюбола в диапазоне 1.3–2 ГэВ [7–11]. Из решеточных расчетов мы знаем также спектр всех глюобольных состояний. Что же касается взаимодействия глюоболов с обычными адронами, то на сегодняшнем этапе развития решеточного подхода эта проблема пока не поддается надежному анализу.

Распад \mathbb{G} мы рассмотрим в контексте калибровочно-гравитационной дуальности, подхода, известного также под названиями соответствие между антидеситтеровским пространством и конформной теорией поля, AdS/CFT, и голографический принцип [22–24]; соответствующие идеи и методы систематически изложены в [25, 26].

В широком смысле калибровочно-гравитационная дуальность — это доктрина, согласно которой значительную часть субъядерной физики в четырехмерном мире удастся понять с помощью физики черных дыр и подобных объектов (черных бран, черных колец) в пятимерном антидеситтеровском пространстве, (AdS₅), границей которого и является этот четырехмерный мир. Однако такое ее понимание выдавало бы желаемое за действительное. Клебанов и Малдацена в научно-популярной статье [27], вспомнив любимый у физиков анекдот о сферическом коне как идеализации живого коня, признают, что «AdS/CFT соответствие — это всего-навсего отыскание гиперболического коня»¹). Для исправления ситуации требуется понять, какая часть голографического отображения физически существенна, а какая подлежит отсечению.

В основном потоке теоретических исследований развивается представление о том, что черная дыра в AdS₅ голографически отображается на сгусток кварк-глюонной плазмы в четырехмерном мире [28]. Эта трактовка голографии была предложена в работе [29] в рамках термодинамического описания гравитационных явлений в AdS₅. Аргументация такова. Если сравнивать значения, которые гравитационное действие

¹ В [27] говорится о корове (cow), но в пересказе с конем шутка по-русски звучит интереснее.

$$I = -\frac{1}{2\kappa^2} \int d^5x \sqrt{g} \left(R + \frac{12}{L^2} \right) \quad (1)$$

принимает при подстановке в него решения для пустого AdS₅ и решения для AdS₅ при наличии шварцшильдовской черной дыры²⁾, то выясняется, что первое меньше второго при $T < T_c$, где T_c — температура фазового перехода Хокинга–Пейджа, а при $T > T_c$ второе становится меньше первого. Отсюда следует термодинамическая неустойчивость пустого пространства AdS₅ при $T > T_c$, приводящая к формированию черной дыры. Голографическим изображением этого процесса на четырехмерной границе AdS₅ является фазовый КХД-переход с формированием кварк-глюонной плазмы при критической температуре, соответствующей T_c .

В другом подходе [30–33] черные Др-браны голографически отображаются на субъядерный мир в фазе конфайнмента. В работе [34] уточнено множество значимых физических сущностей, допущенных к участию в голографическом отображении: экстремальным черным дырам и другим экстремальным черным объектам ставятся в соответствие стабильные микроскопические системы.

Эти две, казалось бы, несовместимые концепции калибровочно-гравитационной дуальности на самом деле не противоречат друг другу. В основе первой из них лежит термодинамическое описание гравитационных явлений в духе Бекенштейна–Хокинга. Во второй концепции термодинамика не играет вообще никакой роли; экстремальные черные объекты являются объектами холодного мира, $T = 0$, они не испытывают хокинговского испарения. Соответствующие системы из разных фаз КХД могут принадлежать разным секторам голографического отображения.

В разд. 3, следуя в целом идеологии работы [34], сужающей голографический контекст до экстремальных черных дыр и их стабильных субъядерных партнеров, мы все же попытаемся извлечь полезные сведения из пограничной зоны, отделяющей область действия голографического принципа от области, где он не имеет силы.

2. РОЖДЕНИЕ ЛЕГЧАЙШЕГО ГЛЮБОЛА

Как уже отмечалось, кинематика и симметрии совместимы с распадом \mathbb{G} на два γ -кванта с про-

²⁾ Для устранения расходимости действия (1) при таких подстановках его нужно регуляризовать, например, с помощью обрезания или введения конечного дилатонного вакуумного ожидания [29].

тивоположными спиральностями. Такой процесс в низшем порядке теории возмущений по α и α_s представлен на рис. 2 диаграммой *в* (см. ниже). Перевернутая диаграмма соответствует обратному процессу: лобовое $\gamma\gamma$ -столкновение с энергией в системе центра инерции \sqrt{s} в диапазоне 1.3–2 ГэВ при условии, что спиральность $\gamma\gamma$ -системы равна нулю, может привести к рождению \mathbb{G} ³⁾.

Для проверки этого замысла идеально подошел бы фотонный коллайдер — уже тщательно проработанный и готовый к воплощению прибор (например, техническая документация фотонного коллайдера TESLA представлена в докладе [35]), в основе которого лежит процесс конверсии лазерных фотонов в γ -кванты высокой энергии в результате рассеяния фотонов на электронах высокой энергии, т. е. так называемый обратный эффект Комптона [36]. Схематически прибор состоит из двух пучков электронов, движущихся навстречу друг другу к точке их встречи \mathbf{x}_* . Электроны сталкиваются с лазерными фотонами на расстоянии примерно 1–5 мм от \mathbf{x}_* . После рассеяния фотоны превращаются в γ -кванты, энергия которых сравнима с энергией электронов, и движутся в направлении \mathbf{x}_* , где они сталкиваются с такими же, но направленными им навстречу γ -квантами. Максимально достижимая энергия ω для γ -квантов составляет

$$\omega = \frac{x}{x+1} E, \quad x \approx \frac{4E\omega_0}{m^2}, \quad (2)$$

где E и ω_0 — энергия соответственно электронов и лазерных фотонов, m — масса электрона. Например, требуется $E = 7.5$ ГэВ, чтобы увеличить энергию фотона $\omega_0 = 1.17$ эВ (лазер на неодимовом стекле) до энергии γ -кванта $\omega = 0.85$ ГэВ.

Используя лазер с энергией вспышки в несколько джоулей, можно получить размер пятна γ -квантов в \mathbf{x}_* , почти равным размеру пятна электронов в этой точке, полная светимость $\gamma\gamma$ -столкновения будет сравнима с «геометрической» светимостью пучка электронов. Спектр энергии γ -квантов приобретает резко пикообразный вид, если электроны продольно поляризованы, а лазерные фотоны циркулярно поляризованы. Это почти вчетверо увеличивает светимость в высокоэнергетическом пике. Од-

³⁾ Мы говорим об этом событии в предположительной модальности, ибо речь идет не просто о конверсии $\gamma\gamma \rightarrow gg$, рис. 1б, которая описывается в рамках обычной теории возмущений, а о возникновении связанного состояния двух глюонов. Мы не в состоянии детально проанализировать формирование глюонного конфайнмента, однако качественные соображения об изучаемом процессе будут получены из калибровочно-гравитационной дуальности в следующем разделе.

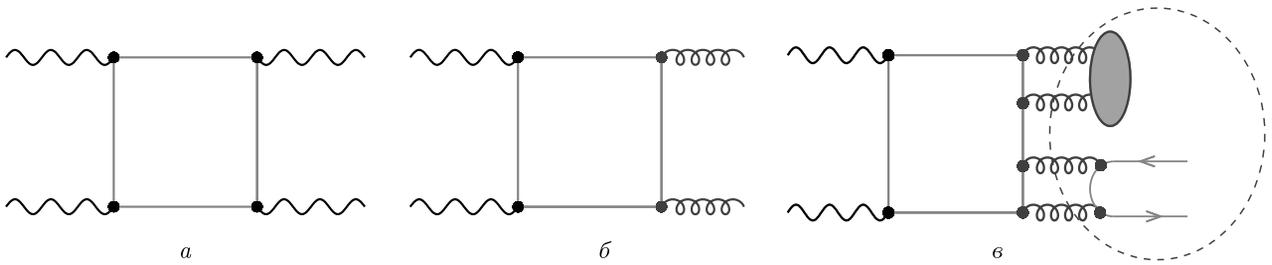


Рис. 1. $\gamma\gamma$ -столкновения, приводящие к возникновению а) двухфотонной системы, б) двухглюонной системы, в) агрегата из глюбола и мезона

ним словом, сегодняшние лазерные технологии имеют все необходимые элементы для скорейшего создания фотонных коллайдеров [35].

Чтобы оценить вероятность превращения $\gamma\gamma \rightarrow gg$ в предложенной схеме опыта, обратимся к недавним свидетельствам рассеяния света на свете, осуществленном во взаимодействии квазиреальных фотонов в ультрапериферических столкновениях Pb + Pb с прицельным параметром, вдвое большим радиуса ядер, и с энергией в системе центра масс $\sqrt{s} = 5.02$ ТэВ в экспериментах коллаборации ATLAS на БАК [37, 38]. Сечение рассеяния процесса

$$Pb + Pb(\gamma\gamma) \rightarrow Pb^{(*)} + Pb^{(*)}\gamma\gamma,$$

измеренное для двухфотонной инвариантной массы свыше 6 ГэВ, имеет значение 78 ± 13 (стат.) ± 7 (сист.) нб. Этот результат согласуется со Стандартной моделью [39], где рассеяние света на свете в главном порядке по α дает петлевая диаграмма, условно изображенная на рис. 1а. Для нас здесь важно, что пересчет результатов измерений ATLAS на элементарное сечение рассеяния света на свете в вакууме при $\sqrt{s} = 1.5$ ГэВ дает $\sigma_{\gamma\gamma \rightarrow \gamma\gamma} \approx 70$ пб — в согласии с [40–42].

Другую порцию информации доставляют стандартные вычисления кваркониевых парциальных ширин в КХД [43, 44]. Правило замены двух внешних фотонных линий двумя внешними глюонными линиями (см. на рис. 1 соответственно диаграммы а и б) определяется множителем

$$\frac{9}{8} \frac{\alpha_s^2(m_c)}{\alpha^2} \approx 845, \quad (3)$$

где $\alpha_s(\mu)$ при μ , равном массе очарованного кварка $m_c = 1.28$ ГэВ, составляет $\alpha_s \approx 0.2$. В самом деле, это значение α_s может быть получено [45, 46] из отношения

$$\frac{\Gamma(J/\phi \rightarrow \text{hadrons})}{\Gamma(J/\phi \rightarrow e^+e^-)} = \frac{5(\pi^2 - 9)\alpha_s^3}{18\pi\alpha^2}, \quad (4)$$

экспериментальное значение которого приблизительно равно 10.

С учетом сказанного можно ожидать, что сечение рождения G в $\gamma\gamma$ -столкновениях с энергией \sqrt{s} в диапазоне 1.3–2 ГэВ составляет $845\sigma_{\gamma\gamma \rightarrow \gamma\gamma} \approx 60$ нб.

Примечательно, что схема предлагаемого эксперимента особо благоприятна для рождения легчайшего глюбола в чистом виде, не смешанного с кварк-антикварковой компонентой. В этом легко убедиться, сравнивая вероятности рождения чистого глюбола и агрегата, состоящего из глюбола и мезона (на рис. 1 соответственно диаграммы б и в): последняя, представленная более высоким порядком теории возмущений, подавлена по сравнению с первой за счет множителя $\alpha_s^4 \approx 1.6 \cdot 10^{-3}$.

Наконец, еще один важный довод в пользу указанной постановки эксперимента состоит в том, что светимость ускорителя электронов, а значит, и $\gamma\gamma$ -коллайдера может значительно превосходить светимость в экспериментах по рассеянию света на свете. Например, светимость Стэнфордского линейного коллайдера ($\approx 3 \cdot 10^{30}$ см²/с) на четыре порядка величины выше светимости ($\approx 5 \cdot 10^{26}$ см²/с) в опыте по рассеянию света на свете в столкновениях Pb+Pb на БАК [37, 38].

3. РАСПАД G

Предполагая, что легчайший глюбол нестабилен, мы должны установить каналы его распада. Нас интересуют главным образом продукты распада в доминирующем канале. Регистрация этих частиц в эксперименте на фотонном коллайдере могла бы подтвердить, что в $\gamma\gamma$ -столкновении рожден именно легчайший глюбол.

В работе [34] предложен следующий критерий по различению нестабильных и стабильных систем субъядерного мира: система стабильна, если дуальная ей черная дыра экстремальна. Можно подумать, что верно и обратное утверждение, а именно: если

система нестабильна, то ее гравитационным двойником является черная дыра обычного типа, подверженная испарению в виде хокинговского излучения. Но это не так. Голографическому соответствию между нестабильными микроскопическими системами и испаряющимися черными объектами препятствуют фундаментальные принципы квантовой механики — принцип обратимости и принцип тождественности и неразличимости частиц.

Квантовомеханические процессы обратимы. В частности, распад и рекомбинация имеют одинаковые амплитуды вероятности. Напротив, испарение черной дыры — процесс необратимый.

Все микроскопические системы данного рода тождественны и неразличимы. Их гравитационные двойники должны проявлять тождественные свойства. Представим себе две инерциальные системы отсчета, \mathcal{O} и \mathcal{O}' , движущиеся одна мимо другой со скоростью V ; часы в них синхронизованы стандартным образом. Пусть в момент их встречи, $t = t' = 0$, в каждой из них покоится по черной дыре с одинаковыми характеристиками — массой, зарядом и спином. Скорость испарения, измеряемая по собственному времени, у каждой из этих черных дыр одинакова. Это означает, что в момент $t > 0$ масса черной дыры в \mathcal{O} будет отличаться от массы черной дыры в \mathcal{O}' ; эффект релятивистского замедления времени не позволяет считать испаряющиеся черные дыры в \mathcal{O} и \mathcal{O}' тождественными объектами⁴⁾.

Мы предполагаем, что \mathbb{G} — нестабильная частица. На первый взгляд, этот факт запрещает апеллировать к голографии: в микромире голография приложима лишь к стабильным системам и недействительна для нестабильных систем. Тем не менее существует пограничная зона, где голографию можно осторожно использовать как руководящий принцип для выяснения общих черт механизма распада нестабильных частиц. Какие для этого имеются доводы?

Распаду частицы можно сопоставить не непрерывное испарение черной дыры, а единичный акт спонтанного расщепления черной дыры на две или несколько черных дыр. Если это расщепление приводит к образованию экстремальных черных дыр⁵⁾, то процесс, очевидно, обратим во времени: изолиро-

ванные экстремальные черные дыры живут в неизменном виде сколь угодно долго, а их столкновение возвращает к существованию исходную черную дыру.

Пусть далее в пятимерной антидеситтеровской вселенной имеется единственная черная дыра или же эта черная дыра удалена от остальной материи настолько, что ее можно считать почти свободной от физических воздействий. Тогда вопрос о квантовомеханической тождественности этой черной дыры объектам такого же рода утрачивает свою остроту. Голографическим партнером такой черной дыры может быть микроскопическая система, у которой по тем или иным причинам запрещено большинство путей распада или даже все пути, кроме единственного.

Мы сосредоточим внимание на распаде нейтральной бесспиновой частицы, при этом будем считать ее гравитационным двойником шварцшильдовскую черную дыру.

Такая черная дыра имеет группу максимальной пространственной изометрии $SO(4)$, эквивалентную группе $SO(3) \times SO(3)$, которая голографически отображается на группу киральной $SU(2)_L \times SU(2)_R$ инвариантности КХД с $N_f = 2$ ароматами. Но в фазе конфайнмента киральная инвариантность спонтанно нарушается до $SU(2)_V$ изоспиновой симметрии. Поэтому разумно ожидать, что дуальная изометрия $SO(4)$ также нарушается до $SO(3)$. Другими словами, шварцшильдовская черная дыра в AdS_5 подвержена спонтанному расщеплению на два черных объекта, симметрия которых ограничена до $SO(3)$, например, на вращающиеся черные дыры Майерса–Перри [48]⁶⁾.

Нейтральная бесспиновая частица, дуальная таковой шварцшильдовской черной дыре, должна распадаться на две частицы со спином. Вновь подчеркнем, что это правило имеет силу лишь в отношении множества частиц из пограничной зоны. У легчайшего нейтрального бесспинового мезона, π^0 , закрыты возможности распада по сильному и слабому взаимодействиям, поэтому π^0 распадается электромагнитным образом, $\pi^0 \rightarrow \gamma\gamma$. Легчайшая скалярная частица, не подверженная сильным и электромагнитным взаимодействиям, бозон Хиггса H^0 , распадается лишь на пары частиц со спином: тяжелые фермионы ($b\bar{b}$, $\tau\bar{\tau}$) или калибровочные век-

⁴⁾ Читатель легко узнает здесь вариант парадокса близнецов, в котором близнецами являются испаряющиеся черные дыры, а их идентификацию осуществляет квантовомеханический принцип тождественности и неразличимости частиц.

⁵⁾ Такой акт — один из возможных сценариев завершения истории испаряющейся черной дыры. Обсуждению предлагавшихся в литературе сценариев посвящен обзор [47].

⁶⁾ Очевидное возражение может состоять в том, что в классической картине шварцшильдовская геометрия устойчива к малым возмущениям. Речь, однако, идет о туннелировании одной черной дыры сквозь горизонт другой черной дыры — явлении, вписывающемся в хокинговскую схему.

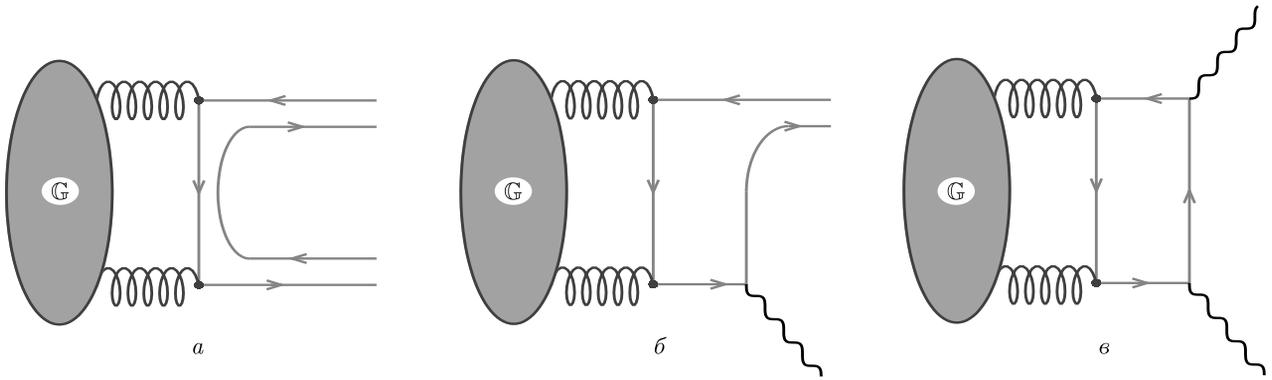


Рис. 2. Каналы распада легчайшего глюбола

торные бозоны (W^+W^- , ZZ , gg , $\gamma\gamma$). Легчайший глюбол, вероятно, попадает в ту же категорию, поскольку единственный мыслимый вариант его распада связан с расщеплением на две векторные частицы: $\mathbb{G} \rightarrow gg$.

Наблюдаемые проявления этого правила для распада \mathbb{G} нетрудно установить в рамках теории возмущений. Ее низшие порядки по α и α_s представлены на рис. 2 планарными диаграммами. Глюоны, кварки и фотоны изображены соответственно в виде спиралей, направленных и волнообразных линий. Произведенные в распаде векторные мезоны, состоящие из пар кварков и антикварков, изображены в виде пар антипараллельных лучей. На диаграмме *a* показана распадная мода, результатом которой оказывается пара нейтральных векторных мезонов, $\rho^0\rho^0$ или $\omega\omega$. Их массы равны соответственно $m_{\rho^0} = 775$ МэВ и $m_\omega = 783$ МэВ. Диаграмма *b* представляет распад \mathbb{G} в виде фотона и нейтрального векторного мезона, которым может быть ρ^0 или ω или ϕ ($m_\phi = 1019$ МэВ). Диаграмма *в* изображает двухфотонный распад. Отношение вероятностей этих каналов дается оценкой $1 : \alpha : \alpha^2$.

Мы видим, что преобладающий голографически мотивированный путь распада легчайшего глюбола представлен процессом $\mathbb{G} \rightarrow \rho^0\rho^0$. Как известно [6], векторный мезон ρ^0 распадается на $\pi^+\pi^-$ ($\approx 100\%$ фракция; $\Gamma = 149.1 \pm 0.8$ МэВ). Это означает, что, как только энергия в системе центра инерции \sqrt{s} достигает массы легчайшего глюбола $m_{\mathbb{G}}$, следует ожидать резкого усиления выхода $\rho^0\rho^0 \rightarrow \pi^+\pi^-\pi^+\pi^-$, причем орбитальное квантовое число l каждой пары $\pi^+\pi^-$ будет равно 1.

4. ОБСУЖДЕНИЕ

Идея применения $\gamma\gamma$ -столкновений для возможного рождения глюболов не является совсем новой и

была реализована как ингредиент экспериментальных исследований в ee - и $e\bar{e}$ -столкновениях [49–51]. Но в основе этих экспериментов лежит физика, отличная от той, которая предложена здесь для обнаружения легчайшего глюбола. В первом случае мы имеем дело с виртуальными фотонами, во втором — с реальными. Согласно концепции векторной доминантности виртуальный фотон способен родить нейтральный векторный мезон, рис. 3*a*. Столкновение виртуальных фотонов (по наиболее вероятному сценарию) ведет к превращению рожденных ими векторных мезонов в пару скалярных мезонов⁷⁾, как это видно из планарной диаграммы на рис. 3*b*. Если учесть диаграммы более высокого порядка с глюонными линиями, то резонанс в сечении рассеяния можно трактовать как глюбол в промежуточном состоянии. В самом деле, эффект смешения глюбола с кварковой $q\bar{q}$ -компонентой явствует из рис. 3*в*; история рождения и распада глюбола сопутствует мировым линиям кварка q и антикварка \bar{q} .

С другой стороны, вероятность спонтанного превращения реального фотона в массивную частицу очень мала, а вот лобовое столкновение реальных фотонов может привести к появлению массивного объекта. Если суммарная спиральность фотонов равна нулю, а энергия в системе центра инерции равна массе легчайшего глюбола $m_{\mathbb{G}}$, то возникший объект как раз и является легчайшим глюболом. Хотя в упомянутых экспериментах комплект реакций $\gamma^*\gamma^* \rightarrow \phi\phi \rightarrow K\bar{K} \rightarrow 4\pi$ на выходе может иметь тот же набор частиц, что и на выходе комплекта реакций $\gamma\gamma \rightarrow \mathbb{G} \rightarrow \rho^0\rho^0 \rightarrow 4\pi$, предлагаемого в настоящей работе, содержание сравниваемых процессов разное.

⁷⁾ Например, в пару $K\bar{K}$, характерную для опытов, анализируемых в работах [49–51].

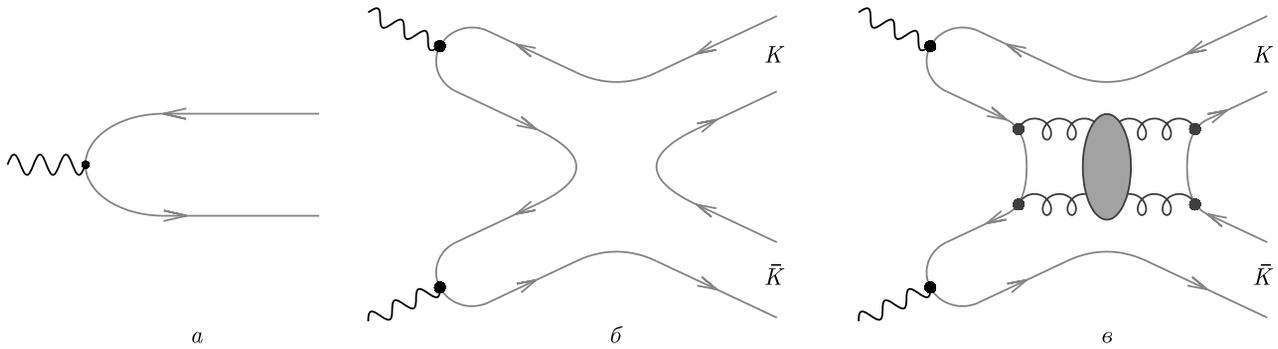


Рис. 3. Сильное взаимодействие фотонов: *а)* виртуальный фотон превращается в векторный мезон; *б)* столкновение двух виртуальных фотонов приводит к рождению $K\bar{K}$ -системы; *в)* столкновение двух виртуальных фотонов приводит к рождению $K\bar{K}$ -системы с промежуточным участием глюбола

Вероятно, следует упомянуть и о недавнем событии [52], косвенно затрагивающем тему нашего обсуждения, — экспериментальном открытии оддерона (виртуальной бесцветной частицы, состоящей из нечетного числа глюонов), который может играть важную роль в динамике трехглюонного векторного глюбола.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Глюбол — загадочный объект. Большинство его свойств связано с инфракрасными эффектами, поэтому не описывается в рамках обычной теории возмущений. Техника производных по киральным разложениям здесь тоже неприменима, ибо легчайший глюбол \mathbb{G} тяжелее 1 ГэВ.

Использование квазиклассических методов блокируется теоремой Коулмена [21], согласно которой не существует наглядного образа глюбола как локализованного объекта, иначе говоря, мы не имеем представления ни о его размерах, ни о структуре. Решеточная КХД предсказывает глобальный спектр масс, но для создания точной картины взаимодействия глюбола с обычной адронной материей эта техника еще недостаточно совершенна.

Остается попытаться обратиться к калибровочно-гравитационной дуальности или, что то же, к голографии. Как выяснено в разд. 3, дуальность неприменима к нестабильным микроскопическим системам. Однако существует пограничная зона, отделяющая область действия голографии от области, где голография не имеет силы. Ряд доводов убеждает нас в том, что для частиц из пограничной зоны голографию можно использовать как наводящее со-

ображение для выяснения качественных черт механизма их распада. Легчайший глюбол как раз принадлежит множеству частиц из пограничной зоны. Голографические соображения в комбинации с расчетными данными о $m_{\mathbb{G}}$ предсказывают доминирующую моду его распада $\mathbb{G} \rightarrow \rho^0 \rho^0$.

В разд. 2 предложен и феноменологически обоснован способ обнаружения \mathbb{G} в эксперименте на фотонном коллайдере. Практическая привлекательность нашего предложения состоит в том, что речь идет о тщательно проработанном и готовом к воплощению проекте (состояние дел описано, например, в [35]).

Идея обнаружения легчайшего глюбола в лобовом $\gamma\gamma$ -столкновении имеет и чисто теоретические достоинства. В предлагаемом опыте ожидается рождение легчайшего глюбола в чистом виде, не смешанного с кварк-антикварковой компонентой, о чем свидетельствуют оценки сечения рождения \mathbb{G} и реально достижимых светимостей на $\gamma\gamma$ -коллайдере. Сегодня известно существование пяти изоскалярных резонансов $f_0(500)$, $f_0(980)$, $f_0(1370)$, $f_0(1500)$, $f_0(1710)$ ⁸⁾ [6]. Среди них только на $f_0(1710)$ падает подозрение, что это скалярный глюбол без смешивания [53, 54], но такой вариант подвергается критике [55]. Если в предлагаемом опыте обнаружится сравнительно узкое состояние при энергии \sqrt{s} , не равной массе ни одного из этих изоскалярных резонансов, то это с полной определенностью будет означать открытие нового вида адронной материи — легчайшего глюбола. Точное измерение $m_{\mathbb{G}}$ укажет путь и даст стимул к дальнейшему усовершенствованию решеточной

⁸⁾ Отметим, что эти резонансы распадаются на бесспиновые частицы $\pi\pi$, $K\bar{K}$, $\eta\eta$, $\eta\eta'$ [6].

версии КХД. Ожидаемое резкое усиление выхода $\pi^+\pi^-\pi^+\pi^-$ при $\sqrt{s} = m_G$ будет прямым экспериментальным подтверждением предсказания калибровочно-гравитационной дуальности.

Благодарности. Мы выражаем признательность Виценте Венто (Vicente Vento), Вольфгангу Охсу (Wolfgang Ochs), Валерию Тельнову и Масуду Чачану (Masud Chaichian) за полезные обсуждения.

ЛИТЕРАТУРА

1. H. Fritzsche and M. Gell-Mann, EConf C720906V2 **2**, 135 (1972); arXiv:hep-ph/0208010.
2. H. Fritzsche and P. Minkowski, Nuovo Cim. A **30**, 393 (1975).
3. P. G. O. Freund and Y. Nambu, Phys. Rev. Lett. **34**, 1645 (1975).
4. R. L. Jaffe and K. Johnson, Phys. Lett. B **60**, 201 (1976).
5. V. Crede and C. A. Meyer, Prog. Part. Nucl. Phys. **63**, 74 (2009); arXiv:hep-ex/0812.0600v3.
6. P. A. Zyla et al. (Particle Data Group), Prog. Theor. Exp. Phys. **2020**, 083C01 (2020).
7. В. В. Анисович, УФН **165**, 1225 (1995); *ibid* **168**, 481 (1998); *ibid* **174**, 49 (2004).
8. F. E. Close and N. A. Törnqvist, J. Phys. G **28**, R249 (2002); arXiv:hep-ph/0204205v3.
9. C. Amsler and N. A. Törnqvist, Phys. Rep. **389**, 61 (2004).
10. V. Mathieu, N. Kochelev, and V. Vento, Int. J. Mod. Phys. E **18**, 1 (2009); arXiv:hep-ph/0810.4453.
11. W. Ochs, J. Phys. G **40**, 043001 (2013); arXiv:hep-ph/1301.5183.
12. S. Kabana and P. Minkowski, Phys. Lett. B **472**, 155 (2000); arXiv:hep-ph/9907570.
13. N. Kochelev and D.-P. Min, Phys. Lett. B **650**, 239 (2007); arXiv:hep-ph/0611250.
14. V. Vento, Phys. Rev. D **75**, 055012 (2007); arXiv:hep-ph/0609219.
15. I. N. Mishustin, L. M. Satarov, and W. Greiner, J. Phys. G **32**, L59 (2006); arXiv:hep-ph/0606251.
16. B. P. Kosyakov, E. Yu. Popov, and M. A. Vronskii, Phys. Lett. B **744**, 28 (2015).
17. S. Weinberg, Phys. Lett. B **251**, 288 (1990).
18. E. Epelbaum, H.-W. Hammer, and U.-G. Meißner, Rev. Mod. Phys. **81**, 1773 (2009); arXiv:nucl-th/0811.1338.
19. R. Machleidt and D. R. Entem, Phys. Rep. **503**, 1 (2011); arXiv:nucl-th/1105.2919.
20. B. P. Kosyakov, E. Yu. Popov, and M. A. Vronskii, Eur. Phys. J. A **53**, 82 (2017); arXiv:hep-ph/1604.06613.
21. S. Coleman, Commun. Math. Phys. **55**, 113 (1977).
22. J. Maldacena, Adv. Theor. Math. Phys. **2**, 231 (1998); arXiv:hep-th/9711200.
23. E. Witten, Adv. Theor. Math. Phys. **2**, 253 (1998); arXiv:hep-th/9802150.
24. S. S. Gubser, I. R. Klebanov, and A. M. Polyakov, Phys. Lett. B **428**, 105 (1998); arXiv:hep-th/9802109.
25. M. Ammon and J. Erdmenger, *Gauge/Gravity Duality*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (2015).
26. H. Năstase, *Introduction to the AdS/CFT Correspondence*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (2015).
27. I. R. Klebanov and J. M. Maldacena, Phys. Today **62**(1), 28 (2009).
28. И. Я. Арефьева, УФН **184**, 569 (2014).
29. C. P. Herzog, Phys. Rev. Lett. **98**, 091601 (2007); arXiv:hep-ph/0608151.
30. T. Sakai and S. Sugimoto, Prog. Theor. Phys. **113**, 843 (2005); arXiv:hep-ph/0412141.
31. T. Sakai and S. Sugimoto, Prog. Theor. Phys. **114**, 1083 (2005); arXiv:hep-ph/0507073.
32. K. Hashimoto, Ch.-I Tan, and S. Terashima, Phys. Rev. D **77**, 086001 (2008); arXiv:hep-ph/0709.2208.
33. F. Bruenner, D. Parganlija, and A. Rebhan, Phys. Rev. D **91**, 106002 (2015); arXiv:hep-ph/1501.07906.
34. B. P. Kosyakov, E. Yu. Popov, and M. A. Vronskii, Class. Quant. Grav. **36**, 135001 (2019); arXiv:hep-th/1802.03545.
35. B. Badelek et al., Int. J. Mod. Phys. A **19**, 5097 (2004); arXiv:hep-ex/0108012.
36. И. Ф. Гинзбург, Г. Л. Коткин, В. Г. Сербо, В. И. Тельнов, Письма в ЖЭТФ **34**, 514 (1981).

37. ATLAS Collaboration, *Nature Phys.* **13**, 852 (2017); arXiv:hep-ex/1702.01625v2.
38. G. Aad et al., *Phys. Rev. Lett.* **123**, 052001 (2019); arXiv:hep-ex/1904.03536.
39. D. d'Enterra and G. G. Silveira, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 080405 (2013) [Erratum: *ibid* **116**, 129901 (2016)]; arXiv:hep-ph/1305.7142.
40. G. Jikia and A. Tkabladze, *Phys. Lett. B* **323**, 453 (1994); arXiv:hep-ph/9312228.
41. G. J. Gounaris, P. I. Porfyriadis, and F. M. Renard, *Phys. Lett. B* **452**, 76 (1999); arXiv:hep-ph/9812378.
42. Z. Bern et al., *JHEP* **0111**, 031 (2001); arXiv:hep-ph/0109079.
43. T. Appelquist and H. D. Politzer, *Phys. Rev. Lett.* **34**, 43 (1975).
44. R. Barbieri, R. Gatto, and R. Kögerler, *Phys. Lett. B* **60**, 183 (1976).
45. T. Appelquist, A. De Rujula, S. L. Glashow, and H. D. Politzer, *Phys. Rev. Lett.* **34**, 365 (1975).
46. А. И. Вайнштейн и др., *УФН* **123**, 217 (1977).
47. P. Chen, Y. C. Ong, and D.-H. Yeom, *Phys. Rep.* **603**, 1 (2015); arXiv:gr-qc/1412.8366.
48. R. C. Myers and M. J. Perry, *Ann. Phys.* **172**, 304 (1986).
49. L3 Collaboration, B. Acciarri et al., *Phys. Lett. B* **501**, 173 (2001); arXiv:hep-ex/0011037.
50. Belle Collaboration, B. Abe et al., *Eur. Phys. J. C* **32**, 323 (2003); arXiv:hep-ex/0309077.
51. S. Uehara et al., *Prog. Theor. Exp. Phys.* **2013**, 123C01 (2013); arXiv:hep-ex/1307.7457.
52. T. Csörgő et al., *Eur. Phys. J. C* **81**, 180 (2021); arXiv:hep-ph/1912.11968.
53. S. Janowski, F. Giacosa, and D. H. Rischke, *Phys. Rev. D* **90**, 114005 (2015); arXiv:hep-ph/1408.4921.
54. M. Albaladejo and J. A. Oller, *Phys. Rev. Lett.* **101**, 252002 (2008); arXiv:hep-ph/0801.4929.
55. L. S. Geng and E. Oset, *Phys. Rev. D* **79**, 074009 (2009); arXiv:hep-ph/0812.1199.

РАЗРАБОТКА ДИЗАЙНА СВЕРХМНОГОПЕРИОДНЫХ ИЗЛУЧАЮЩИХ СТРУКТУР ТЕРАГЕРЦЕВОГО ДИАПАЗОНА, ВЫРАЩИВАЕМЫХ МЕТОДОМ МОЛЕКУЛЯРНО-ПУЧКОВОЙ ЭПИТАКСИИ

Л. Г. Герчи́ков^{a,b*}, *А. С. Дашко́в*^{a**}, *Л. И. Горай*^{a,c***}, *А. Д. Буравле́в*^{c,d,e****}

^a Академический университет им. Ж. И. Алфёрова
194021, Санкт-Петербург, Россия

^b Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого
195251, Санкт-Петербург, Россия

^c Институт аналитического приборостроения Российской академии наук
190103, Санкт-Петербург, Россия

^d Университет при Межпарламентской ассамблее Евразийского экономического сообщества
199106, Санкт-Петербург, Россия

^e Санкт-Петербургский государственный электротехнический университет «ЛЭТИ» им. В. И. Ульянова (Ленина)
197376, Санкт-Петербург, Россия

Поступила в редакцию 9 декабря 2020 г.,
после переработки 24 февраля 2021 г.
Принята к публикации 10 марта 2021 г.

Разработан дизайн источника терагерцевого (ТГц) излучения на основе сверхрешетки AlGaAs/GaAs, получаемой методом молекулярно-пучковой эпитаксии. Рассчитаны коэффициент усиления и уровень оптических потерь и определены параметры источника, при которых возможна генерация ТГц-излучения. Исследовано резонансное поведение коэффициента усиления, обусловленное сильным перемешиванием туннельно-связанных электронных состояний.

DOI: 10.31857/S0044451021080058

1. ВВЕДЕНИЕ

В настоящее время рассматриваются различные подходы и устройства для создания эффективных источников терагерцевого (ТГц) излучения, в том числе перестраиваемых и работающих при околокомнатных температурах [1–4]. В отличие от рентгеновского излучения, терагерцевые волны не опасны, они не ионизируют среду и не повреждают биологические молекулы, что позволяет проводить безопасную для человека диагностику раковых опухолей, определять степень ожогов, исследовать верх-

ние ткани человеческого тела — кожу, сосуды, мышцы. Источники терагерцевого излучения также могут быть использованы в системах безопасности, например, для сканирования багажа и людей на значительных расстояниях. Одним из наиболее перспективных подходов для создания перестраиваемых компактных источников терагерцевого излучения является использование полупроводниковых приборов со сверхрешетками (СР), например, квантово-каскадных лазеров или гетероструктур со множественными сильно-связанными квантовыми ямами (КЯ) [5–7]. В данном исследовании разработка дизайна сверхмногопериодных (СМП — со 100 и более периодами СР) полупроводниковых АЗВ5-структур для ТГц-диапазона рассматривается в связи с созданием перестраиваемых лазерных источников, выращиваемых методом молекулярно-пучковой эпитаксии (МПЭ) и работающих при комнатной темпера-

* E-mail: lgerchikov@mail.ru

** E-mail: dashkov.alexander.om@gmail.com

*** E-mail: lig@pcgrate.com

**** E-mail: bour@mail.ioffe.ru

туре за счет образования соответствующих энергетических уровней Ванье–Штарка [8, 9] и последовательного туннелирования носителей через несколько периодов при условии относительной прозрачности барьеров [10–13].

Возникновение блоховских осцилляций в подобных структурах может быть ограничено из-за статической отрицательной дифференциальной проводимости (ОДП), которая связана с образованием электрических доменов и неоднородным распределением электрического поля. Вследствие этого возможно подавление усиления блоховской волны [14]. Для предотвращения возникновения электрических доменов необходимо создать СР с узкими запрещенными минизонами («слабыми» барьерами), в которой происходит зиннеровское туннелирование в достаточно сильном электрическом поле, а слабость барьеров обеспечивает большой матричный элемент переходов через несколько периодов [15, 16]. При этом может возникать динамическая ОДП, за счет которой и происходит усиление терагерцевого излучения [12, 15]. Для достижения максимального коэффициента усиления излучения на определенной частоте требуются СР с высоким уровнем легирования (10^{16} – 10^{18} см $^{-3}$) и высокой подвижностью электронов. Это приводит к необходимости создания однородных СР с большим количеством периодов (порядка нескольких сотен и даже 1000 и более), чтобы преодолеть суммарное поглощение в резонаторе генератора (контактных областях) и потери на вывод излучения.

Таким образом, необходимо разработать дизайн, синтезировать и исследовать «толстые» СР, толщиной порядка 5–10 мкм и более, с заданными параметрами и высоким качеством морфологии слоев и состава. Синтез подобных СМП-структур с однородным легированием, постоянным периодом по всей толщине, субатомным уровнем шероховатости интерфейсов, малым количеством дефектов и стабильным составом является весьма сложной научной задачей [17]. Преимущество используемого нами метода МПЭ заключается в эпитаксиальном выращивании материалов высокой чистоты, наличии прецизионных методов контроля роста и сверхвысокого вакуума во время синтеза. Кроме того, возможность резкого прерывания и последующего возобновления поступления на подложку молекулярных пучков позволяет создавать резкие гетерограницы, что особенно важно для создания протяженных СР, а высокая стабильность температуры источников обеспечивает постоянство состава [18]. В частности, для синтеза СМП-структур высокого качества

с необходимым числом периодов СР мы использовали полупромышленную установку молекулярно-пучковой эпитаксии Riber 49 и современную исследовательскую установку Riber Compact 21 EB 200.

Исследуемый в настоящей работе тип структуры включает в себя СР, состоящие из 10–1000 периодов 10 нм слоев GaAs и 2 нм слоев Al $_{0.2}$ Ga $_{0.8}$ As, легированных примесью *n*-типа (Si) заданной концентрации в диапазоне 10^{16} – 10^{18} см $^{-3}$. Структуры с отличными толщинами барьеров и КЯ также будут рассмотрены. Ранее нами были предложены метод расчета электронных спектров АЗВ5 СР [19], а также методика высокоточной характеристики морфологии и состава подобных структур [17, 20, 21], состоящая из согласованного применения нового метода глубокой рентгеновской рефлектометрии, основанного на строгом методе расчета [22], и известных методов высокоразрешающей рентгеновской рефлектометрии и дифрактометрии и просвечивающей электронной микроскопии. Данная методика позволила детально исследовать 100-периодные структуры Al $_{0.3}$ Ga $_{0.7}$ As толщиной около 1.2 мкм с различным уровнем легирования на лабораторных рентгеновских источниках и с высокой точностью определить толщины слоев, их состав и шероховатость/диффузность границ, что стало первым шагом на пути анализа толстых структур на ярких источниках синхротронного излучения [23]. Настоящая работа посвящена определению дизайна МПЭ-структур подобного типа с СР GaAs/Al $_x$ Ga $_{1-x}$ As и расчету (оценкам) важнейших электронных и оптических параметров разрабатываемого источника ТГц-излучения.

2. ВЫБОР СОСТАВА И ТОЛЩИН СЛОЕВ СВЕРХРЕШЕТКИ

При приложении вдоль оси СР внешнего электрического поля минизонный энергетический спектр СР трансформируется в спектр лестниц Ванье–Штарка, т.е. в дискретные уровни энергии, смещенные друг относительно друга на величину уменьшения напряжения U за период СР. Схематически такой энергетический спектр представлен на рис. 1 для случая наличия двух уровней размерного квантования в каждой из квантовых ям СР. При постепенном увеличении напряжения U уровни 1 и 2 в ямах, разделенных n периодами СР, последовательно оказываются в резонансе. Рисунок 1 иллюстрирует подобный резонанс для уровней, разделенных двумя периодами СР ($n = 2$). Сближение уровней размерного

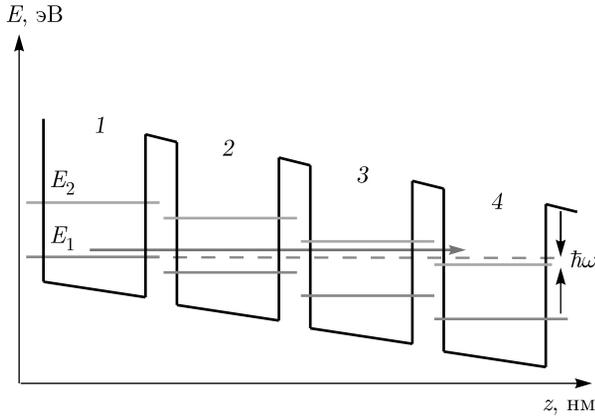


Рис. 1. (В цвете онлайн) Профиль потенциала зоны проводимости СР с двумя дискретными энергетическими уровнями. Красной стрелкой обозначен излучающий переход с частотой ω

квантования приводит к нескольким резонансным эффектам. Во-первых, увеличивается вероятность туннелирования между резонансными уровнями, что приводит к резонансам в вольт-амперной характеристике (ВАХ) СР [12]. Во-вторых, как будет показано ниже, одновременно с этим резонансно увеличивается вероятность оптического перехода между туннельно-связанными уровнями. Последнее может быть использовано для эффективной генерации ТГц-излучения [12].

Для реализации эффекта резонансной ТГц-генерации необходимо создать СР, обладающую рядом зачастую взаимоисключающих свойств. Поэтому выбор параметров СР является результатом компромисса, краткое описание которого приводится ниже.

Первое условие относится к энергетическому расстоянию между резонансными уровнями, которое должно соответствовать ТГц-диапазону. Поскольку минимальное расстояние между туннельно-связанными уровнями определяется удвоенным значением туннельного матричного элемента V , его величина должна быть порядка нескольких мэВ. Туннельная прозрачность СР должна быть максимально возможной при заданной частоте генерации. Это требование необходимо для предотвращения возникновения электрических доменов в СР, т.е. для обеспечения однородного распределения электронов вдоль оси СР. Это условие налагает определенные ограничения на выбор высоты и ширины барьера СР.

Также для резонансной генерации необходимо, чтобы разность энергий уровней размерного кван-

тования в одной КЯ намного превосходила энергию ТГц-перехода. Энергия размерного квантования зависит от ширины и глубины КЯ, причем последняя ее фактически и ограничивает. С другой стороны, глубина КЯ, т.е. высота барьера СР, должна быть минимально возможной для обеспечения высокой туннельной прозрачности СР. Понятно, что наилучший компромисс для выполнения этих условий возможен при наличии в КЯ только двух уровней размерного квантования, а энергия верхнего из них должна быть сопоставима с высотой барьера.

Приведенные выше условия и определяют выбор состава и ширин слоев СР. Критерии выбора оптимальной длины СР и уровня ее легирования будут обсуждены в следующих разделах. В качестве материала СР мы используем структуру GaAs/Al_xGa_{1-x}As, технология выращивания которой хорошо отработана и способна обеспечить высокое качество создаваемой СМП СР. Используя приведенные выше критерии, мы разработали дизайн СР GaAs/Al_xGa_{1-x}As для резонансных переходов между КЯ, разделенными двумя, $n = 2$, и тремя, $n = 3$, периодами СР. Для $n = 2$ в качестве такой оптимальной структуры нами выбрана СР1 GaAs(10 нм)/Al_{0.2}Ga_{0.8}As(2 нм). Структура, оптимизированная для переходов через три периода СР2, имеет более узкие барьеры при той же концентрации Al: GaAs(10 нм)/Al_{0.2}Ga_{0.8}As(1.5 нм). Меньшая толщина барьеров во второй структуре СР2 делает каждый ее барьер более прозрачным, чем у СР1, с тем, чтобы матричный элемент туннелирования V через два периода в СР1 был сопоставим с матричным элементом туннелирования V через три периода в СР2.

Для структур СР1 и СР2 нами были проведены численные расчеты по моделированию участков статической ВАХ в области предполагаемых резонансных переходов методом Монте-Карло. В самосогласованном квазиклассическом расчете по методу Монте-Карло [24] учитывались электронные состояния двух нижних минизон размерного квантования СР [25, 26]. Отметим, что использованная модель не учитывает когерентности туннельно-связанных электронных состояний (см. ниже). Поэтому она описывает нерезонансный вклад в статическую ВАХ. Целью проведенного расчета была проверка отсутствия ОДП в ВАХ в области предполагаемых резонансных переходов [15]. Так, например, при достаточно слабом внешнем электрическом поле вертикальный электронный транспорт оказывается локализованным в нижней минизоне, что приводит к возникновению ОДП.

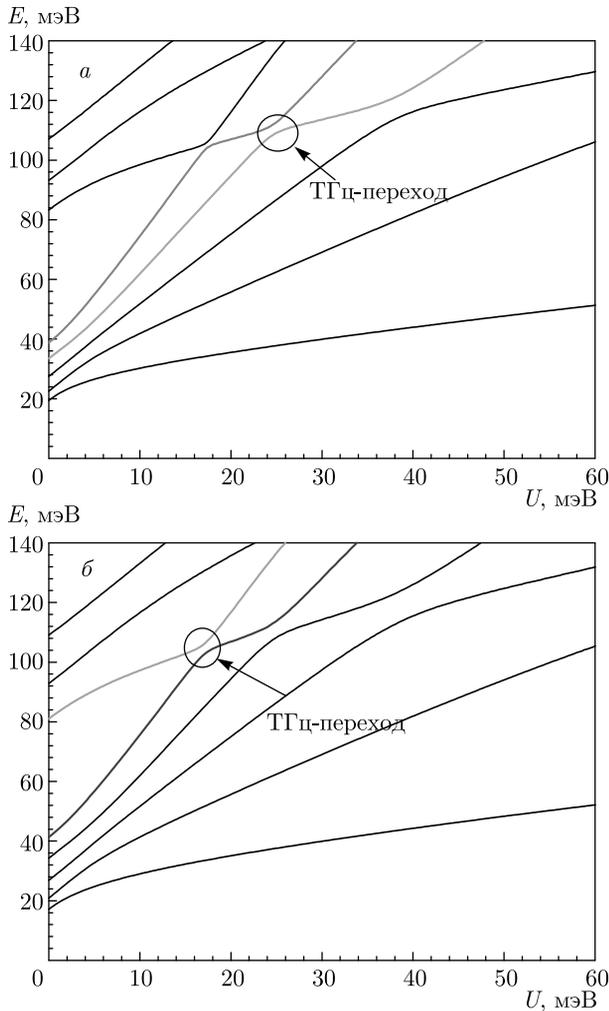


Рис. 2. Зависимости положений уровней энергии размерного квантования E от приложенного напряжения на один период CP U для исследуемых структур $CP1$ (а) и $CP2$ (б)

Проведенные расчеты показали монотонный рост ВАХ со значениями удельной дифференциальной проводимости $1.2 \cdot 10^3 \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{м}^{-1}$ и $1.5 \cdot 10^3 \text{ Ом}^{-1} \cdot \text{м}^{-1}$ для структур $CP1$ и $CP2$ соответственно, при температуре $T = 300 \text{ К}$ и концентрации электронов $n_e = 10^{17} \text{ см}^{-3}$. Рост тока с увеличением приложенного поля обусловлен увеличением вероятности межминизонных электронных переходов. В пределах расчетной погрешности производные ВАХ не принимают отрицательных значений. Полученный результат означает, что нежелательный эффект статической ОДП отсутствует в разработанных структурах $CP1$ и $CP2$.

Отметим также, что транспортные свойства аналогичных CP исследовались экспериментально в ра-

ботах [15, 16]. В полученных там ВАХ отсутствуют области ОДП. Анализ этих ВАХ также установил [16], что в подобных сверхрешетках не возникает неоднородности электрического поля, препятствующей генерации ТГц-излучения.

На рис. 2 приведены зависимости положений краев подзон размерного квантования в структурах $CP1$ и $CP2$, состоящих из 5 периодов каждая, от величины приложенного напряжения на один период CP U . Энергетический спектр CP рассчитывался методом эффективной массы в однозонном приближении. Стационарное уравнение Шредингера для электрона в CP решалось методом матриц переноса [24–26]. Профиль потенциала дна зоны проводимости и эффективная масса электрона $m_e(z)$ вычислялись на основе кр-метода [25, 27, 28] и справочных данных из [29, 30].

Спектр CP в зависимости от приложенного напряжения имеет вид веерной диаграммы. При $U = 0$ спектр представлен двумя группами уровней (число уровней в группе равно числу КЯ в CP), соответствующих первой, e_1 , и второй, e_2 , электронным минизонам CP . С увеличением приложенного поля расстояния между уровнями в группе начинают расти как разность потенциалов U соседних КЯ, образуя лестницу Ванье–Штарка из минизонных состояний e_1 и e_2 . Пересечения уровней Ванье–Штарка для лестниц e_1 и e_2 соответствуют искомому резонансу, когда уровень e_1 в одной КЯ оказывается близок к уровню e_2 в другой КЯ, отстоящей от первой на $n + 1$ периодов CP . Если ввести значения энергий уровней квантования e_1 и e_2 в изолированной КЯ $E_{e_{1,2}}$, то условие резонанса можно приближенно записать как

$$E_{21} = E_{e_2} - E_{e_1} \simeq (n + 1)U. \quad (1)$$

На рис. 2 выделены области резонансного перехода для планируемой ТГц-генерации в $CP1$ и $CP2$. Видно, что вследствие туннельной связи уровней их пересечение заменяется на квазипересечение. Изменяя величину приложенного напряжения, можно плавно перестраивать частоту излучения, начиная с минимальной в центре резонанса. Для обеих структур эта минимальная энергия оптического перехода составляет около 3.5 мэВ, но достигается она при разных значениях приложенного напряжения, $U = 24.5 \text{ мэВ}$ для $CP1$ и $U = 17.1 \text{ мэВ}$ для $CP2$. Помимо указанных переходов для каждой структуры возможны резонансные переходы между КЯ, разделенными другим числом периодов CP . Величина напряжения U , соответствующая этим резонансам,

определяется условием (1) — на рис. 2 это области квазипересечений уровней. Минимальное расстояние между пересекающимися уровнями убывает с ростом числа периодов СР между туннельно-связанными КЯ. Так, для СР1 они составляют 7.5, 3.4, 1.9 мэВ для $n = 1, 2, 3$. А для СР2 они составляют 10.3, 5.5, 3.5 мэВ для тех же значений n .

Сравнение рис. 2а и 2б показывает зависимость спектра СР от толщины барьера. Она плавная, с увеличением толщин барьеров уменьшаются размеры областей квазипересечений уровней, а их положение меняется слабо. При изменении же ширин КЯ происходит изменение энергии размерного квантования, а с ней плавно меняются положения областей квазипересечений уровней. Размер областей квазипересечений уровней также меняется. С увеличением ширин КЯ уменьшаются энергии уровней размерного квантования, а с ними уменьшаются вероятности туннелирования между КЯ и, соответственно, ширины областей квазипересечений уровней.

Зависимость энергии оптического перехода $\hbar\omega$ от приложенного напряжения представлена на рис. 3 для выделенных резонансных переходов обеих структур. Там же показана зависимость от U дипольного матричного элемента перехода

$$D = \langle \Psi_d | z | \Psi_u \rangle. \quad (2)$$

Здесь $\Psi_{u,d}$ обозначают волновые функции верхнего и нижнего электронных состояний оптического перехода. Оптический матричный элемент D вычислялся по волновым функциям $\Psi_{u,d}$, найденным ранее при численном решении уравнения Шредингера.

На рис. 3 видно, что оптический матричный элемент D имеет характерный максимум в области резонанса. Этот факт может быть качественно проиллюстрирован в простой двухуровневой модели. В рамках этой модели электронная волновая функция представляется в виде суперпозиции,

$$\Psi_{u,d} = C_1\psi_1 + C_2\psi_2, \quad (3)$$

двух ванье-состояний $\psi_{1,2}$, локализованных на уровне e_1 в одной КЯ и на уровне e_2 в другой КЯ. Амплитуды $C_{1,2}$ и энергии состояний $\Psi_{u,d}$ находятся диагонализацией гамильтониана

$$\hat{H} = \begin{pmatrix} \varepsilon_1 & V \\ V & \varepsilon_2 \end{pmatrix}, \quad (4)$$

где энергии ванье-состояний 1 и 2 равны соответственно $\varepsilon_1 = E_{e_1} + (n+1)U$ и $\varepsilon_2 = E_{e_2}$, а V — матричный элемент туннелирования между ямами.

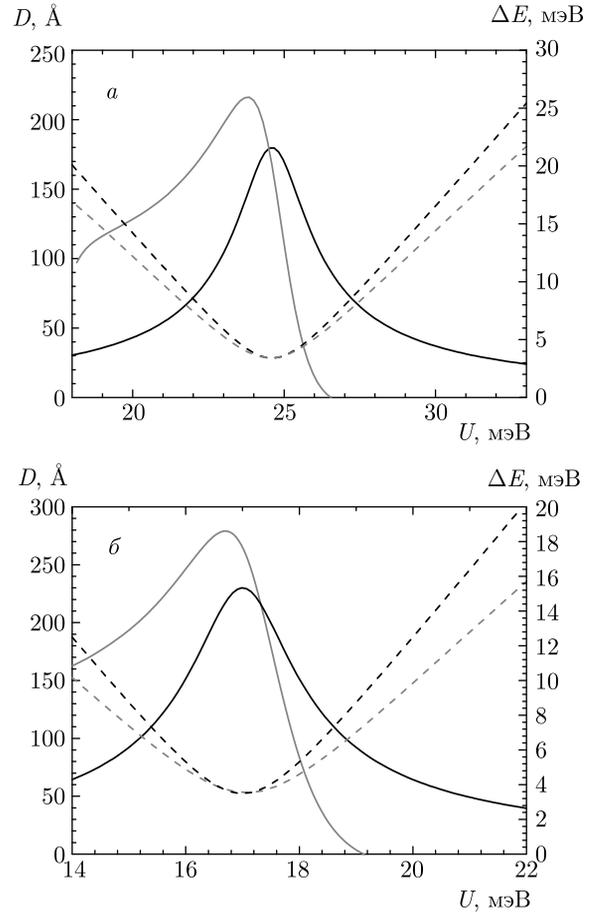


Рис. 3. (В цвете онлайн) Зависимости дипольного матричного элемента D и энергии перехода ΔE для СР1 (а) и СР2 (б) от приложенного напряжения U . Красные кривые — численный расчет D (сплошные) и ΔE (штриховые). Черные кривые — двухуровневая модель D (сплошные) и ΔE (штриховые)

Энергия оптического перехода в этой модели оказывается равной

$$\Delta E = \sqrt{\Delta\varepsilon^2 + 4V^2}, \quad (5)$$

где $\Delta\varepsilon = \varepsilon_1 - \varepsilon_2$. Оптический матричный элемент в пренебрежении перекрытия волновых функций ψ_1 и ψ_2 равен

$$D = \frac{(n+1)dV}{\sqrt{\Delta\varepsilon^2 + 4V^2}}. \quad (6)$$

Резонансное увеличение дипольного матричного элемента, описываемое этой формулой, вызвано сильным перемешиванием состояний 1 и 2 в области резонанса. Максимальное значение $D = (n+1)d/2$, равное половине расстояния между ямами, достигается в центре резонанса при максимальном перемешивании состояний, когда $|C_{1,2}| = 1/\sqrt{2}$. Таким образом, большая величина дипольного матричного элемента структуры СР2 по сравнению с СР1

(см. рис. 3) объясняется большим расстоянием между связанными КЯ в СР2.

На рис. 3 проводится сравнение зависимостей (5), (6) с результатами численных расчетов. Величина туннельного матричного элемента двухуровневой модели подбиралась для лучшего согласия модельных и точных расчетов: $V = 1.7$ мэВ для СР1 и $V = 1.75$ мэВ для СР2. Достигнутое согласие свидетельствует об адекватной интерпретации полученных результатов в терминах двухуровневой модели. Этот факт позволяет нам использовать двухуровневую модель в расчетах генерации ТГц-излучения.

3. ТЕРАГЕРЦЕВОЕ ИЗЛУЧЕНИЕ

Для генерации ТГц-излучения необходимо добиться условия, при котором генерация излучения в СР превосходит потери этого излучения. Условие такого баланса записывается в виде [31]

$$\alpha_g \Gamma > \alpha_l, \quad (7)$$

где $\alpha_{g,l}$ — коэффициенты усиления и поглощения электромагнитной волны, множитель Γ показывает степень перекрытия электромагнитной волны с активной областью СР. Излучение электромагнитной волны происходит в СР за счет оптических переходов между электронными состояниями Ψ_u и Ψ_d . Соответствующий коэффициент усиления определяется выражением

$$\alpha_g(\omega) = \frac{(2\pi eD)^2 \omega}{\text{cn}(\omega)} (f_u - f_d) \delta(E_u - E_d - \hbar\omega), \quad (8)$$

где ω — частота излучения, $n(\omega)$ — показатель преломления СР, $f_{u,d}$ — средняя концентрация электронов в состояниях Ψ_u и Ψ_d , дипольный матричный элемент перехода D (2) обсуждался в предыдущем разделе.

Заселенности электронных состояний можно найти из решения стационарного кинетического уравнения

$$i[\hat{H}\hat{\rho}] = \text{Sp}\{\hat{\rho}\}, \quad (9)$$

где $\hat{\rho}$ — матрица электронной плотности, $\text{Sp}\{\hat{\rho}\}$ — интеграл столкновений. Кинетическое уравнение рассматривается в базисе двухуровневой системы $\psi_{1,2}$ [32, 33]. Гамильтониан в кинетическом уравнении (9) есть гамильтониан двухуровневой системы (4). Интеграл столкновений записывается в приближении постоянного времени релаксации:

$$\text{Sp}\{\hat{\rho}\} = \begin{pmatrix} \gamma(f_1^{(0)} - \rho_{11}) & -\gamma\rho_{12} \\ -\gamma\rho_{21} & \gamma(f_2^{(0)} - \rho_{22}) \end{pmatrix}, \quad (10)$$

где $\gamma = \hbar/\tau$ — скорость релаксации, предполагаемая одинаковой для всех состояний,

$$f_1^{(0)} = \frac{n_e}{1 + \exp(-E_{21}/kT)}, \quad f_2^{(0)} = \frac{n_e}{1 + \exp(E_{21}/kT)}$$

— равновесные плотности в отсутствие резонансных туннельных переходов, n_e — средняя концентрация электронов в СР, $E_{21} = E_{e2} - E_{e1}$.

Решение кинетического уравнения (9) дает значения матрицы плотности в базисе $\psi_{1,2}$. Мнимая часть недиагональной компоненты матрицы плотности дает величину тока электронов, обусловленную резонансными туннельными переходами:

$$I = 2V \text{Im}\{\rho_{12}\} = \frac{2V^2 \gamma (f_1^{(0)} - f_2^{(0)})}{\Delta\varepsilon^2 + 4V^2 + \gamma^2}. \quad (11)$$

Это выражение совпадает с результатами [12, 32]. Значения электронных плотностей $f_{u,d}$ получаются унитарным преобразованием матрицы плотности ρ_{ij} к базису $\Psi_{u,d}$. Для разности электронных плотностей мы получили простое соотношение

$$f_u - f_d = (f_1^{(0)} - f_2^{(0)}) \frac{\Delta\varepsilon}{\Delta E}, \quad (12)$$

где разность энергий уровней $\Delta E = E_u - E_d$ определяется выражением (5) двухуровневой модели.

Подставив это выражение в коэффициент усиления (8) и заменив дельта-функцию профилем Лоренца, получим

$$\alpha_g(\omega) = \frac{4\pi\omega e^2 n_e}{\text{cn}(\omega)} \frac{\gamma D^2}{(\Delta E - \omega)^2 + \gamma^2} \times \frac{\Delta\varepsilon}{\Delta E} \text{th}\left(\frac{E_{21}}{2kT}\right). \quad (13)$$

Если в этом выражении использовать значение дипольного матричного элемента двухуровневой модели (6), получим приближенное аналитическое выражение для α_g в области резонанса:

$$\alpha_g(\omega) = \frac{4\pi\omega e^2 n_e}{\text{cn}(\omega)} \frac{\gamma((n+1)d)^2}{(\Delta E - \omega)^2 + \gamma^2} \times \frac{\Delta\varepsilon V}{(\Delta\varepsilon^2 + 4V^2)^{3/2}} \text{th}\left(\frac{E_{21}}{2kT}\right). \quad (14)$$

На рис. 4 приведены зависимости максимальных значений коэффициента усиления $\alpha_g(\omega = \Delta E/\hbar)$ от приложенного напряжения, рассчитанных по формуле (13) для структур СР1 и СР2, параметр времени релаксации был выбран $\gamma = 3.3$ мэВ, концентрация электронов $n_e = 1 \cdot 10^{17}$ см⁻³. Полученные зависимости подобны для обеих рассматриваемых структур. Максимальное значение усиления достигается при небольшом положительном смещении

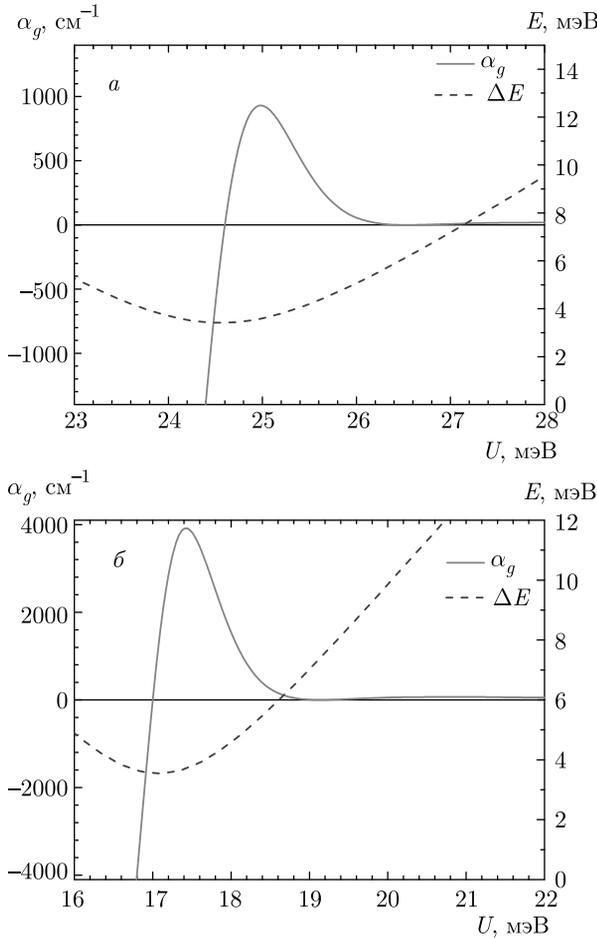


Рис. 4. Зависимости коэффициента усиления α_g и энергии перехода ΔE для CP1 (а) и CP2 (б) от приложенного напряжения U

относительно точки пересечения уровней $\Delta\varepsilon = 0$, необходимо для создания инверсной заселенности $f_u > f_d$. При дальнейшем увеличении $\Delta\varepsilon$ коэффициент усиления быстро убывает в связи с резким уменьшением дипольного матричного элемента при выходе из области резонанса. При отрицательных смещениях $\Delta\varepsilon < 0$ значения $\alpha_g < 0$, что соответствует поглощению излучения при нормальной заселенности уровней $f_u < f_d$. Увеличение максимального значения α_g у CP2 по сравнению с CP1 объясняется большим значением дипольного матричного элемента D у CP2, но главным образом тем обстоятельством, что максимум в зависимости $D(U)$ у CP2 лежит ближе к точке пересечения уровней, чем у CP1 (см. рис. 3). Численный расчет дипольного матричного элемента дает некоторое смещение максимума $D(U)$ от положения резонанса в сторону $\Delta\varepsilon < 0$. Генерация же излучения начинается при

$\Delta\varepsilon > 0$, когда возникает инверсная заселенность уровней. Этот факт приводит к уменьшению максимального значения α_g . Для CP2 указанное смещение максимума D оказывается меньше, а максимальное значение α_g , соответственно, больше.

Для определения коэффициента потерь излучения α_l и множителя Γ важно устройство резонатора и волновода. В данной работе для оценки приборных характеристик мы используем классическую структуру волновода с двумя параллельными металлическими контактами. Стоит отметить, что очевидным минусом использования такой конструкции является дороговизна и технологическая сложность производства. Однако она позволяет добиться довольно высокого значения Γ -фактора, а также в этом случае относительно просто оценивать потери [34, 35].

Известно множество источников потерь лазерного излучения [31]. Однако, в отличие от более коротковолновых лазеров, в случае источника ТГц-излучения их число существенно уменьшается в силу того, что значительная их часть действует вне ТГц-диапазона. Так, переходы между другими квантовыми уровнями лестниц Ванье – Штарка имеют энергии, на порядок превышающие энергию основного ТГц-перехода. Это относится и к переходам с участием оптических фононов. Таким образом, потери ТГц-излучения сводятся к потерям на зеркалах при выводе излучения и потерям, обусловленным поглощением излучения в волноводе:

$$\alpha_l = \alpha_w + \alpha_m, \tag{15}$$

$$\alpha_m = \frac{-\ln(R_f R_b)}{2L}, \tag{16}$$

$$\alpha_w = \frac{4\pi \text{Im}[\tilde{n}]}{\lambda}, \tag{17}$$

где α_w — коэффициент поглощения в волноводе, α_m — величина потерь на зеркалах, \tilde{n} — эффективный показатель преломления волновода, λ — длина волны излучения, L — длина резонатора, R_f, R_b — коэффициенты отражения передней и задней граней волновода.

В качестве конечной структуры рассматривается конструкция волновода, состоящая из двух параллельных металлических слоев Ti/Au толщиной 10/500 нм, контактных областей GaAs 100/75 нм и легированием $10^{18}, 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ соответственно, а также активной области, состоящей из большого числа периодов СР. Длина резонатора составляет 3 мм, а ширина полоски 150 мкм.

Для рассматриваемой конструкции прибора $\alpha_m \approx 4 \text{ см}^{-1}$. Эта величина оказывается на два

порядка меньше коэффициента усиления в области резонанса (см. рис. 4) при концентрации электронов в активной области $n = 5 \cdot 10^{16} \text{ см}^{-3}$ и более.

Поэтому самым существенным фактором при выборе уровня легирования и толщины рабочей области являются потери излучения в волноводе. По проведенным нами оценкам аналогично [34] для СР1 величина α_w монотонно убывает при увеличении числа периодов СР от значения $\alpha_w = 80 \text{ см}^{-1}$ при числе периодов $N = 50$ до $\alpha_w = 30 \text{ см}^{-1}$ при $N = 800$. При этом наблюдается довольно слабая зависимость α_w от степени легирования активной области n . Приведенные выше значения α_w были рассчитаны при уровне легирования $n = 10^{16} \text{ см}^{-3}$.

Значения Γ -фактора также зависят от числа периодов СР N , но сильной эта зависимость является для СР с $N < 50$. А для $N > 100$ изменение Γ составляет не более 10%. Так, для рассматриваемой здесь структуры мы получили при $N = 100$ значение $\Gamma = 0.88$ и $\Gamma = 0.97, 0.99$ при $N = 400, 800$ соответственно.

Таким образом, проведенные оценки показывают, что начиная с $N = 100$ периодов и степени легирования $n = 10^{16} \text{ см}^{-3}$ можно ожидать генерации ТГц-излучения в рассматриваемых структурах. Действительно, при этих параметрах $\alpha_w = 75 \text{ см}^{-1}$ и полный коэффициент поглощения $\alpha_l = \alpha_w + \alpha_m = 79 \text{ см}^{-1}$ оказывается меньше, чем максимальное значение усиления $\Gamma\alpha_g = 96 \text{ см}^{-1}$ в области резонанса для СР1 (см. рис. 4).

С увеличением уровня легирования активной области левая часть неравенства условия генерации (7) растет быстрее, чем правая. Поэтому для источника ТГц-излучения следует выбирать уровень легирования $n > 10^{16} \text{ см}^{-3}$. Однако для значительно повышения уровня легирования существуют серьезные ограничения, связанные с сохранением высокого структурного качества СР. Анализ спектров фотолюминесценции СР [17] показывает, что уширение электронного энергетического спектра СР при $n \simeq 10^{18} \text{ см}^{-3}$ превышает энергию ТГц-перехода, что делает такую СР непригодной для использования в качестве активной области источника ТГц-излучения.

Поэтому мы считаем оптимальным ограничиться уровнем легирования СР $n \simeq 10^{17} \text{ см}^{-3}$. При этом, с одной стороны, уширение спектра электронов еще не нарушает резонансного характера электронных переходов для генерации ТГц-излучения. С другой стороны, при таком уровне легирования возможно создание СМП СР с высоким структурным качеством [23]. Так, при числе периодов $N = 400$ и

$n = 10^{17} \text{ см}^{-3}$ в рассматриваемых структурах $\Gamma = 0.98$ и $\alpha_l = 54 \text{ см}^{-1}$. Это обеспечит значительное превышение усиления ТГц-излучения $\Gamma\alpha_g$ над потерями α_l в условии генерации (7) для обеих рассматриваемых структур СР1 и СР2. Для СР2 это превышение составляет почти два порядка, что позволяет изменять приложенное напряжение в интервале $17 \text{ мЭВ} < U < 19 \text{ мЭВ}$ при сохранении условия $\alpha_l < \alpha_g$. При этом энергия перехода меняется от минимального значения 3.5 мЭВ до значения 6.5 мЭВ. Этот интервал перекрывается с энергией следующего резонансного перехода с туннелированием через две КЯ, минимальная энергия которого составляет 5.5 мЭВ. Тем самым появляется возможность для одной структуры, меняя приложенное напряжение, плавно перестраивать частоту генерации в широком диапазоне.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данной статье представлен разработанный дизайн источника ТГц-излучения на основе СМП СР GaAs/Al_{0.2}Ga_{0.8}As. Для рассматриваемой конструкции источника были рассчитаны коэффициент усиления и уровень оптических потерь.

Генерация ТГц-излучения происходит при оптических резонансных переходах между туннельно-связанными состояниями электрона в СР. Проведенные численные расчеты показали наличие сильного максимума оптического матричного элемента этих переходов в области резонанса. Этот эффект обусловлен сильным перемешиванием туннельно-связанных электронных состояний в области резонанса, что было продемонстрировано в работе в рамках двухуровневой модели. Двухуровневая модель была также использована для расчета инверсной заселенности электронных уровней и коэффициента усиления ТГц-излучения. Проведенные расчеты коэффициента усиления и оптических потерь позволили определить параметры источника, при которых возможна генерация. В качестве источника ТГц-излучения предложена структура, состоящая из 400 периодов СР GaAs/Al_{0.2}Ga_{0.8}As, с уровнем легирования активной области 10^{17} см^{-3} . Данная структура также позволяет проводить перестройку длины волны генерируемого излучения в широком диапазоне.

Дальнейшие исследования должны быть направлены на экспериментальное и теоретическое изучение транспорта носителей в создаваемых СМП-структурах, включая моделирование ВАХ

и оценку реальных потерь в приконтактных и контактных областях образца. Также следует уделить внимание другим конструкциям волноводов с целью упрощения технологии производства таких источников ТГц-излучения.

Финансирование. Работа частично поддержана Министерством образования и науки Российской Федерации (FSRM-2020-0008) и Российским фондом фундаментальных исследований (проект № 19-29-12053).

ЛИТЕРАТУРА

1. *Генерация и усиление сигналов терагерцового диапазона*, под ред. А. Е. Храмова, А. Г. Баланова, В. Д. Еремки и др., Изд. Сарат. гос. техн. унив., Саратов (2016).
2. R. Leyman, N. Bazieva, T. Kruczek et al., *Recent Pat. Signal Process.* **2**, 12 (2012).
3. A. E. Yachmenev, S. S. Pushkarev, R. R. Reznik et al., *Prog. Cryst. Growth Charact. Mater.* **66**, 100485 (2020).
4. L. Bosco, M. Franckić, G. Scalari et al., *Appl. Phys. Lett.* **115**, 010601 (2019).
5. R. Köhler, A. Tredicucci, F. Beltram et al., *Nature* **417**, 156 (2002).
6. C. Gmachl, D. L. Sivco, R. Colombelli et al., *Nature* **415**, 883 (2002).
7. A. Wacker, *Phys. Rep.* **357**, 1 (2002).
8. G. H. Wannier, *Phys. Rev.* **117**, 432 (1960).
9. H. M. James, *Phys. Rev.* **76**, 1611 (1949).
10. T. Unuma and S. Maeda, *Appl. Phys. Express* **12**, 041003 (2019).
11. I. V. Altukhov, S. E. Dizhur, M. S. Kagan et al., *JETP Lett.* **103**, 122 (2016).
12. A. A. Andronov, E. P. Dodin, D. I. Zinchenko et al., *JETP Lett.* **102**, 207 (2015).
13. M. I. Amanti, G. Scalari, R. Terazzi et al., *New J. Phys.* **11**, 125022 (2009).
14. F. Klappenberger, K. N. Alekseev, K. F. Renk et al., *Eur. Phys. J. B* **39**, 483 (2004).
15. A. A. Andronov, E. P. Dodin, D. I. Zinchenko et al., *Quant. Electron.* **40**, 400 (2010).
16. A. A. Andronov, E. P. Dodin, D. I. Zinchenko et al., *Semiconductors* **43**, 228 (2009).
17. L. I. Goray, E. V. Pirogov, M. S. Sobolev et al., *J. Phys. D: Appl. Phys.* **53**, 455103 (2020).
18. H. Asahi and Y. Horikoshi, *Molecular Beam Epitaxy: Materials and Device Applications*, Wiley (2019).
19. A. V. Subashiev, L. G. Gerchikov, and A. N. Ipatov, *J. Appl. Phys.* **96**, 1511 (2004).
20. L. I. Goray, E. V. Pirogov, M. S. Sobolev et al., *Semiconductors* **53**, 1910 (2019).
21. L. I. Goray, E. V. Pirogov, E. V. Nikitina et al., *Semiconductors* **53**, 1914 (2019).
22. L. I. Goray and G. Schmidt, *Boundary Integral Equation Methods for Conical Diffraction and Short Waves in Gratings: Theory and Numerical Applications*, ed. by E. Popov, Ch. 12, Presses Universitaires de Provence, Marseille (2014).
23. Л. И. Горай, Е. В. Пирогов, М. С. Соболев и др., *ЖТФ* **90**, 1906 (2020).
24. A. S. Dashkov and L. I. Goray, *J. Phys.: Conf. Ser.* **1410**, 012085 (2019).
25. C. Sirtori, F. Capasso, J. Faist, and S. Scandolo, *Phys. Rev. B* **50**, 8663 (1994).
26. C. Jirauschek, *IEEE J. Quant. Electron.* **45**, 1059 (2009).
27. E. O. Kane, *Handbook on Semiconductors*, ed. by W. Paul, **1**, 193 Amsterdam (1982).
28. R. Ferreira and G. Bastard, *Phys. Rev. B* **40**, 1074 (1989).
29. I. Vurgaftman, J. R. Meyer, and L. R. Ram-Mohan, *J. Appl. Phys.* **89**, 5815 (2001).
30. S. Adachi, *Properties of Group-IV, III-V and II-VI Semiconductors*, Wiley (2005).
31. L. A. Coldren and S. W. Corzine, *Diode Lasers and Photonic Integrated Circuits*, Wiley, New York (1995).
32. Р. Ф. Казаринов, Р. А. Сурис, *ФТП* **5**, 797 (1971).
33. Р. Ф. Казаринов, Р. А. Сурис, *ФТП* **6**, 148 (1972).
34. B. S. Williams, *Nat. Photonics* **1**, 517 (2007).
35. R. A. Khabibullin, N. V. Shchavruk, D. S. Ponomarev et al., *EPJ Web Conf.* **195**, 04002 (2018).

ИЗУЧЕНИЕ ДИФФУЗИОННЫХ СВОЙСТВ КИСЛОРОДА В TiO_2 А. В. Бакулин ^{a,b*}, Л. С. Чумакова ^a, С. Е. Кулькова ^{a,b**}^a Институт физики прочности и материаловедения Сибирского отделения Российской академии наук
634055, Томск, Россия^b Национальный исследовательский Томский государственный университет
634050, Томск, РоссияПоступила в редакцию 16 февраля 2021 г.,
после переработки 16 февраля 2021 г.
Принята к публикации 2 марта 2021 г.

Методом проекционных присоединенных волн в рамках теории функционала электронной плотности рассчитаны энергии образования кислородных вакансий и миграционные барьеры кислорода в TiO_2 со структурой рутила. Получены аналитические выражения для температурных коэффициентов диффузии вдоль двух кристаллографических направлений с использованием метода Лэндмана и рассчитаны значения энергии активации и предэкспоненциального множителя. Показано, что температурный коэффициент диффузии находится в хорошем согласии с экспериментом и с результатами, полученными ранее статистическим методом. Обсуждается влияние примесей на диффузионные свойства кислорода в оксиде.

DOI: 10.31857/S004445102108006X

1. ВВЕДЕНИЕ

Известно, что в титане и его сплавах при окислении на поверхности образуется пленка диоксида титана со структурой рутила. Добавление алюминия делает процесс окисления более сложным, поскольку алюминий, как и титан, имеет сродство к кислороду и образует оксид со структурой корунда $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. Однако с увеличением содержания титана в сплаве Ti-Al на поверхности формируется пленка диоксида титана, поскольку термодинамические характеристики двух оксидов предполагают большую стабильность интерфейсов с TiO_2 [1]. Наличие вакансий и дефектов в TiO_2 может существенно влиять на перенос кислорода. Ранее в нашей работе [2] была изучена диффузия кислорода в ряду алюминидов титана $\text{TiAl}_3 - \text{TiAl} - \text{Ti}_3\text{Al}$ в рамках статистического подхода [3]. Было показано, что увеличение содержания титана в сплаве ведет к изменению механизма диффузии, при этом диффузия кислорода вдоль оси c становится более предпочтительной, чем вдоль оси a , а температурный коэффициент диффузии существенно уменьшается. Расчеты

коэффициента диффузии, проведенные в $\alpha_2\text{-Ti}_3\text{Al}$ [4], с миграционными барьерами, полученными методом *ab initio*, находятся в хорошем согласии с экспериментом [5]. Как и в эксперименте [5], диффузия кислорода вдоль $[0001]$ идет быстрее, чем в перпендикулярном направлении. Рассчитанные значения энергии активации (1.99 эВ и 1.97 эВ) также находятся в согласии с отмеченными выше экспериментальными данными [5]. В работе [6] для расчета температурного коэффициента диффузии в TiAl был адаптирован метод Лэндмана [7, 8], который применялся для изучения диффузии кислорода в титане в работах [9, 10], а также для изучения диффузии водорода в $\gamma\text{-TiAl}$ [11]. Отметим, что практически одновременно с работой [6] были опубликованы еще две работы [12, 13], в которых данный метод использовался для изучения диффузии кислорода в $\gamma\text{-TiAl}$. Несмотря на ряд различий в расчетах, связанных с использованием разного набора позиций внедрения кислорода, и стабильности некоторых позиций, результаты данных работ в целом согласуются между собой. В то же время в [6] было проведено сопоставление значений коэффициента диффузии, рассчитанных с использованием статистического подхода и модели Лэндмана. Было установлено, что в методе Лэндмана учет новых позиций внедрения кислорода и его диффузионных путей ведет к значи-

* E-mail: bakulin@ispms.tsc.ru

** E-mail: kulkova@ms.tsc.ru

тельному повышению диффузии вдоль оси a , тогда как температурный коэффициент диффузии вдоль оси c изменяется в меньшей степени. Анализ вкладов в коэффициент диффузии вдоль двух направлений от разных путей миграции кислорода позволил установить, что повышение коэффициента диффузии вдоль оси a связано с его большей зависимостью от путей с низкими миграционными барьерами. Заметим, что миграционные барьеры кислорода в диоксиде титана рассчитывались в нескольких работах [14, 15], при этом рассматривалась диффузия как нейтральной, так и заряженной вакансии. Однако температурный коэффициент диффузии кислорода в оксиде в данных работах не рассчитывался.

Таким образом, целью настоящей работы является изучение диффузионных свойств кислорода в диоксиде титана со структурой рутила, в том числе в присутствии дефектов.

2. МЕТОД РАСЧЕТА

Расчеты электронной структуры TiO_2 проводились методом проекционных присоединенных волн (PAW) в плоско-волновом базисе [16, 17] с обобщенным градиентным приближением для обменно-корреляционного функционала в форме GGA-PBE [18]. Максимальная энергия плоских волн из базисного набора была равна 400 эВ. Оптимизация электронной структуры проводилась до тех пор, пока разница в полных энергиях для двух последующих итераций не достигала 10^{-5} эВ. При расчете электронной структуры оксида интегрирование по зоне Бриллюэна проводилось с использованием сетки k -точек $9 \times 9 \times 15$ [19]. Релаксация положений атомов проводилась с использованием метода сопряженных градиентов до достижения сил на атомах не более 0.01 эВ/Å. Равновесные параметры решетки TiO_2 со структурой рутила, полученные в настоящем расчете ($a = 4.611$ Å и $c = 2.956$ Å), отличаются от экспериментальных значений 4.594 Å и 2.959 Å [20] менее чем на 0.4%. Прimitивная ячейка диоксида титана характеризуется пространственной группой 136 ($P4_2/mnm$), при этом атомы титана занимают позиции Вайкоффа (Wyckoff positions) $2a$, а атомы кислорода — $4f$.

Для оценки диффузионных барьеров кислорода в TiO_2 применялся метод подталкивающих упругих связей с восходящими изображениями (CI-NEB) [21]. Начальное положение пяти изображений вдоль диффузионного пути задавалось путем линейной интерполяции между начальным и конечным поло-

жением диффундирующего атома. При последующей одновременной релаксации всех пяти изображений каждый атом считался упруго связанным с таким же атомом в соседних изображениях. Для нахождения седловой точки использовался алгоритм сопряженных градиентов, при этом учитывались дополнительные подталкивающие силы, ориентированные вдоль пути диффузии. Необходимым критерием нахождения седловой точки является обращение в нуль касательных сил, действующих на диффундирующий атом в этой точке. Считалось, что седловая точка обнаружена, если эта сила не превышала 10^{-3} эВ/Å. Тестовые расчеты показали, что миграционные барьеры практически не изменяются при увеличении энергии обрезания плоских волн от 400 эВ до 550 эВ. Оценка миграционных барьеров кислорода проводилась в суперячейке ($2 \times 2 \times 3$). Заметим, что увеличение размера ячейки незначительно отражается на энергетических барьерах примерно 0.05–0.10 эВ.

Влияние примеси на энергию образования кислородной вакансии (E^f) оценивалось следующим образом:

$$\Delta E^f = (E_{\text{Ti}_{23}\text{XO}_{47}} - E_{\text{Ti}_{23}\text{XO}_{48}}) - (E_{\text{Ti}_{24}\text{O}_{47}} - E_{\text{Ti}_{24}\text{O}_{48}}), \quad (1)$$

где $E_{\text{Ti}_{23}\text{XO}_{47}}$ ($E_{\text{Ti}_{24}\text{O}_{47}}$) и $E_{\text{Ti}_{23}\text{XO}_{48}}$ ($E_{\text{Ti}_{24}\text{O}_{48}}$) — полные энергии легированного (нелегированного) оксида соответственно с O-вакансией и без нее.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Температурный коэффициент диффузии кислорода в TiO_2

На рис. 1 приведена атомная структура диоксида титана и положение примеси, а также показаны миграционные пути вакансии кислорода. Рассчитанные значения миграционных барьеров для путей A и C равны 1.17 эВ и 2.12 эВ, что находится в хорошем согласии с результатами ранних расчетов 1.2 эВ и 2.1 эВ [14], тогда как для пути B разница в значении барьера составляет 0.3 эВ (1.20 эВ и 0.90 эВ [14]). Энергия образования кислородной вакансии в TiO_2 равна 4.28 эВ, что находится в хорошем согласии со значением 4.30 эВ [22]. Имеются две позиции вакансии вблизи примеси X (рис. 1). Небольшая разница в E^f была получена в случае элементов $3d$ – $4d$ -периодов и IIIA–IVA-групп (рис. 1б), но она более существенна для $5d$ элементов. Видно, что Zr, Nb, Mo, Hf, Ta, W и Re увеличивают энергию образования

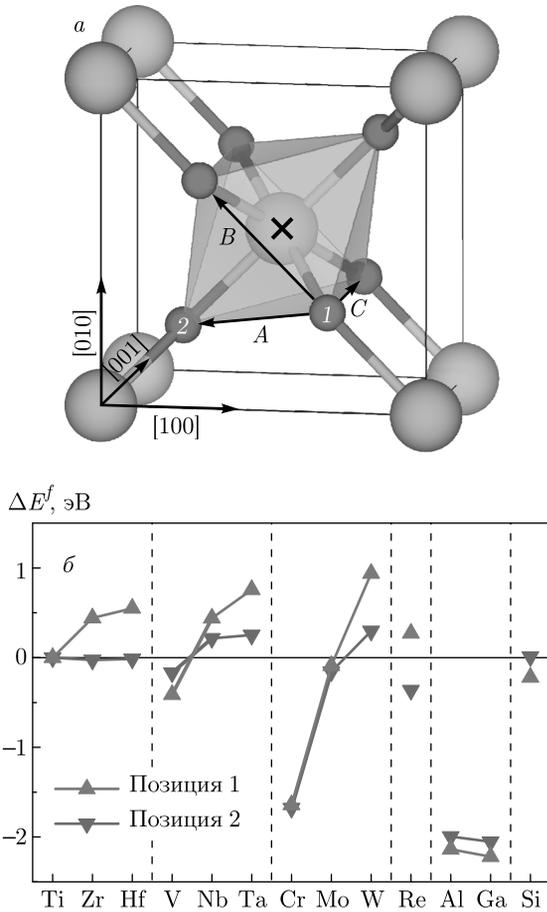


Рис. 1. (В цвете онлайн) Атомная структура TiO_2 (а): миграционные пути показаны стрелками, положение примеси — крестом, а кислородных вакансий — цифрами; изменение энергии образования О-вакансии в оксиде (б)

О-вакансии. Известно, что примеси, увеличивающие E^f , ведут к понижению концентрации кислородных вакансий в оксиде и могут препятствовать диффузии кислорода из оксида в сплав. В то же время влияние примесей на миграционные барьеры кислорода в оксиде более сложное [23]. Только изоэлектронные титану элементы (Hf и Zr), а также Mo увеличивают миграционные барьеры.

Расчет температурного коэффициента диффузии является нетривиальной задачей. В литературе в основном рассматривается диффузия кислорода по междоузельному механизму, однако в оксидах диффузия кислорода может проходить по вакансионному механизму. Для оценки температурного коэффициента диффузии кислорода в TiO_2 в рамках вакансионного механизма использовался метод Лэндмана [7, 8]. В данном методе с помощью преобразования Лапласа матрицы плотности времени ожида-

ния, $\tilde{\psi}(u)$, и фурье-образа матрицы смещений, $\tilde{p}(\mathbf{k})$, строится матрица-пропагатор:

$$R(\mathbf{k}, u) = E - \tilde{p}(\mathbf{k}) \circ \tilde{\psi}(u), \quad (2)$$

где символом \circ обозначено поэлементное произведение матриц, а E — единичная матрица.

Коэффициент диффузии D в направлении \mathbf{k}_r рассчитывается по следующей формуле:

$$D_r = \frac{1}{2} \lim_{\substack{\mathbf{k} \rightarrow 0 \\ u \rightarrow 0}} \left[\left(\frac{\partial \det R}{\partial u} \right)^{-1} \frac{\delta^2 \det R}{\delta \mathbf{k}_r^2} \right]. \quad (3)$$

В случае диффузии в рамках вакансионного механизма коэффициент диффузии необходимо дополнительно умножить на концентрацию вакансий. В нелегированном оксиде матрицы $\tilde{\psi}(u)$ и $\tilde{p}(\mathbf{k})$ имеют размерность 4×4 , поскольку рассматривается только вакансионный механизм диффузии по 4f-позициям Вайкоффа. С учетом обозначения перескоков между ближайшими позициями кислорода (рис. 1а) изображение матрицы плотности времени ожидания будет иметь следующий вид:

$$\tilde{\psi}(u) = \begin{pmatrix} \frac{2\Gamma_C}{K} & \frac{4\Gamma_A}{K} & \frac{4\Gamma_A}{K} & \frac{\Gamma_B}{K} \\ \frac{4\Gamma_A}{K} & \frac{2\Gamma_C}{K} & \frac{\Gamma_B}{K} & \frac{4\Gamma_A}{K} \\ \frac{4\Gamma_A}{K} & \frac{\Gamma_B}{K} & \frac{2\Gamma_C}{K} & \frac{4\Gamma_A}{K} \\ \frac{\Gamma_B}{K} & \frac{4\Gamma_A}{K} & \frac{4\Gamma_A}{K} & \frac{2\Gamma_C}{K} \end{pmatrix}, \quad (4)$$

где $K = 8\Gamma_A + \Gamma_B + 2\Gamma_C + u$, а частоты перескоков Γ_i оценивались как

$$\Gamma_i = \sqrt{\frac{E_i^m}{2md_i^2}} \exp\left(-\frac{E_i^m}{k_B T}\right), \quad (5)$$

где E_i^m — энергия миграции кислорода вдоль пути i ($i = A, B$ или C), m — масса атома кислорода $2.66 \cdot 10^{-26}$ кг, d_i — длина пути миграции i , k_B — постоянная Больцмана, а T — температура.

Фурье-образ матрицы смещений строится следующим образом:

$$\tilde{p}(\mathbf{k}) = \begin{pmatrix} A_{11} & A_{12} & A_{13} & A_{14} \\ A_{21} & A_{22} & A_{23} & A_{24} \\ A_{31} & A_{32} & A_{33} & A_{34} \\ A_{41} & A_{42} & A_{43} & A_{44} \end{pmatrix}, \quad (6)$$

где

$$\begin{aligned}
 A_{11} &= A_{22} = A_{33} = A_{44} = \frac{1}{2}(e^{il_3k_3} + e^{-il_3k_3}), \\
 A_{12} &= \frac{1}{4}(1 + e^{-il_3k_3} + e^{il_2k_2} + e^{il_2k_2 - il_3k_3}), \\
 A_{13} &= \frac{1}{4}(1 + e^{-il_3k_3} + e^{il_1k_1} + e^{il_1k_1 - il_3k_3}), \\
 A_{23} &= e^{il_1k_1 - il_2k_2}, \\
 A_{14} &= 1, \\
 A_{24} &= \frac{1}{4}(1 + e^{il_3k_3} + e^{il_1k_1} + e^{il_1k_1 + il_3k_3}), \\
 A_{34} &= \frac{1}{4}(1 + e^{il_3k_3} + e^{il_2k_2} + e^{il_2k_2 + il_3k_3}).
 \end{aligned}
 \tag{7}$$

Остальные компоненты матрицы $\tilde{p}(\mathbf{k})$ могут быть найдены из соотношения $\tilde{p}_{ij}(\mathbf{k}) = \tilde{p}_{ji}^*(\mathbf{k})$, где звездочка означает комплексное сопряжение. Компоненты вектора $\mathbf{k} - k_1, k_2, k_3$ — соответствуют его проекциям на кристаллографические направления [100], [010] и [001], поэтому $l_1 = l_2 = a$ и $l_3 = c$, где a и c — параметры решетки оксида. Таким образом, без учета концентрации вакансий коэффициенты диффузии кислорода вдоль осей a и c в методе Лэндмана описываются следующими формулами:

$$D'_a = a^2 \frac{\Gamma_A(2\Gamma_A + \Gamma_B)}{4\Gamma_A + \Gamma_B}, \tag{8}$$

$$D'_c = c^2(\Gamma_A + \Gamma_C), \tag{9}$$

где Γ_i — частота перескока атома кислорода вдоль пути i (5).

Коэффициенты диффузии кислорода в TiO_2 вдоль двух кристаллографических направлений, рассчитанные методом Лэндмана, приведены на рис. 2а. Здесь же представлены результаты статистического подхода [23]. Видно, что оба метода дают близкие результаты, при этом энергия активации диффузии вдоль обоих кристаллографических направлений равна 1.18 эВ в методе Лэндмана и 1.17 эВ в статистическом подходе.

3.2. Влияние концентрации вакансий на коэффициент диффузии

Для оценки концентрации кислородных вакансий использовался подход, описанный в работе [27]. В рамках данного подхода концентрация вакансий зависит от парциального давления кислорода, температуры, заряда вакансии и энергии Ферми. Ниже приводятся результаты, полученные для фиксированного парциального давления O_2 ($\ln(P(\text{O}_2)/P^0) = -20$). Рассчитанные коэффициенты диффузии

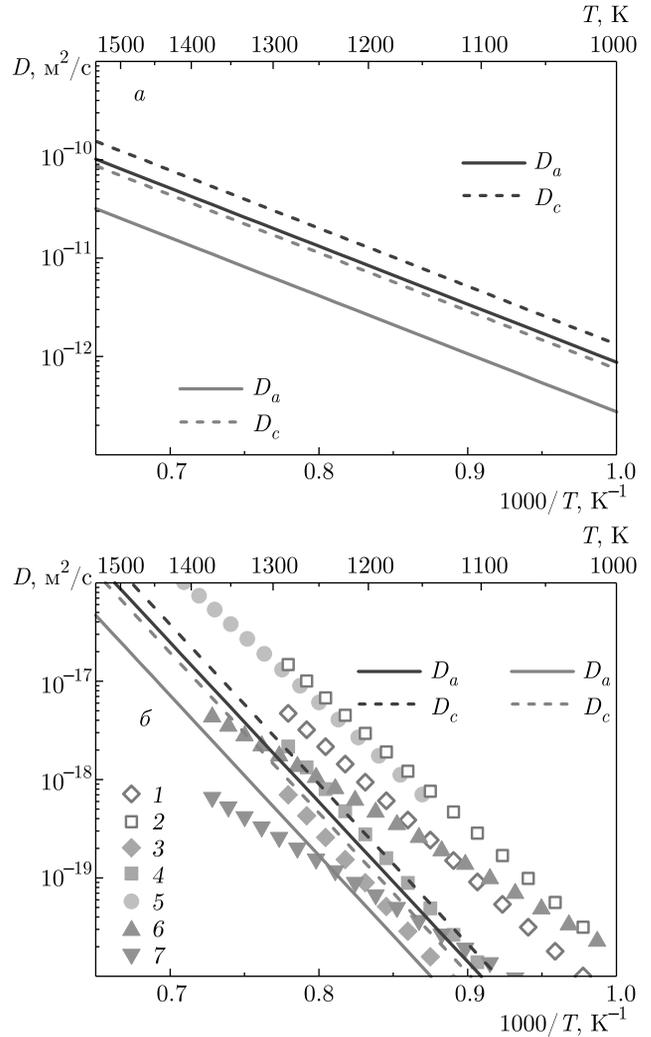


Рис. 2. (В цвете онлайн) Коэффициенты диффузии D_a и D_c в TiO_2 , рассчитанные методом Лэндмана (сплошные и штриховые красные линии), в сопоставлении с результатами, полученными в рамках статистического подхода (сплошные и штриховые синие линии), без учета концентрации О-вакансий (а), а также с учетом концентрации О-вакансий в сравнении с экспериментальными данными (б): 1 — [24] быстрый механизм D_a , 2 — [24] быстрый механизм D_c , 3 — [24] медленный механизм D_a , 4 — [24] медленный механизм D_c , 5 — [25], 6 — [26] природный рутил, 7 — [26] синтезированный рутил

вдоль осей a и c в оксиде с учетом концентрации О-вакансий представлены на рис. 2б. Видно, что теоретические коэффициенты диффузии находятся в хорошем согласии с экспериментом [24] для медленного диффузионного механизма, но они меньше экспериментальных значений из работы [25]. Последние находятся в хорошем согласии с результатами работы [24] для быстрого диффузионного механиз-

ма. Отметим, что экспериментальные результаты, полученные для природного и синтетического рутила [26], отличаются от результатов [24, 25] наклонном кривых. Понижение энергии активации кислородной диффузии авторы [26] связывают с отжигом рутила в воде при высоких температурах. Отметим, что диффузия кислорода в рамках междоузельного механизма изучалась в работе [28], при этом рассматривалась миграция дважды ионизированного атома кислорода. Интересно, что диффузивность O^{2-} -иона удовлетворительно согласуется с результатами [24] для быстрого диффузионного механизма. Это позволяет предположить, что медленный и быстрый механизмы диффузии соответствуют вакансионному и междоузельному.

Согласно настоящим расчетам коэффициенты диффузии кислорода в TiO_2 вдоль осей a и c в методе Лэндмана описываются следующими формулами:

$$D_a = 0.178 \cdot 10^{-6} \exp(-3.23/k_B T) \text{ м}^2/\text{с}, \quad (10)$$

$$D_c = 0.484 \cdot 10^{-6} \exp(-3.23/k_B T) \text{ м}^2/\text{с}, \quad (11)$$

где k_B — постоянная Больцмана, а T — температура.

В статистическом подходе эти коэффициенты равны

$$D_a = 5.68 \cdot 10^{-6} \exp(-3.22/k_B T) \text{ м}^2/\text{с}, \quad (12)$$

$$D_c = 8.63 \cdot 10^{-6} \exp(-3.22/k_B T) \text{ м}^2/\text{с}. \quad (13)$$

Коэффициент анизотропии диффузии D_c/D_a в методе Лэндмана (2.7) существенно выше, чем в статистическом подходе (1.5), и удовлетворительно согласуется с экспериментальным значением 3.1 для медленного механизма диффузии [24].

3.3. Влияние примеси на коэффициент диффузии

Для учета влияния примеси в методе Лэндмана необходимо увеличивать ячейки, чтобы достичь нужной концентрации примеси, что увеличивает размерность матриц $\tilde{\psi}(u)$ и $\tilde{p}(\mathbf{k})$ и усложняет получение аналитических выражений для D . В этой связи использование статистического метода является более удобным для оценки влияния примесей на температурный коэффициент диффузии. В данном подходе необходимо принять во внимание вероятность того, что О-вакансия и атом примеси находятся в первых соседях. Она пропорциональна концентрации вакансий и примесей. Наиболее простой

способ учесть наличие примесей заключается в использовании в расчетах средневзвешенных значений энергий образования вакансии и миграции:

$$E^f = \frac{2}{3} \left[c_{imp} E_{dop}^f(1) + (1 - c_{imp}) E_{undop}^f \right] + \frac{1}{3} \left[c_{imp} E_{dop}^f(2) + (1 - c_{imp}) E_{undop}^f \right], \quad (14)$$

$$E^m(A) = c_{imp} \left[\frac{1}{2} E_{dop}^m(A) + \frac{1}{2} E_{undop}^m(A) \right] + (1 - c_{imp}) E_{undop}^m(A),$$

$$E^m(B) = c_{imp} E_{dop}^m(B) + (1 - c_{imp}) E_{undop}^m(B), \quad (15)$$

$$E^m(C) = c_{imp} \left[\frac{1}{2} E_{dop}^m(C) + \frac{1}{2} E_{undop}^m(C) \right] + (1 - c_{imp}) E_{undop}^m(C),$$

где $E_{dop}^f(1)$ и $E_{dop}^f(2)$ — энергии образования вакансии кислорода в легированном TiO_2 в позиции 1 и 2 (рис. 1а), E_{undop}^f — энергия образования О-вакансии в нелегированном оксиде, $E_{dop}^m(A)$, $E_{dop}^m(B)$, $E_{dop}^m(C)$ и $E_{undop}^m(A)$, $E_{undop}^m(B)$, $E_{undop}^m(C)$ — энергии миграции кислорода в легированном и нелегированном TiO_2 соответственно вдоль путей A , B и C , c_{imp} — концентрация примеси. Множители $2/3$ и $1/3$ в формуле (14) отражают тот факт, что вблизи примеси находится в два раза больше позиций 1, чем позиций 2. Множитель $1/2$ в выражениях (15) для энергии миграции кислорода вдоль путей A и C обусловлен возможностью диффузии вблизи или вдали от примесного атома, причем число путей этих двух типов одинаково. В то же время перескок вдоль пути B всегда проходит вблизи примеси.

Результаты расчета влияния концентрации примеси на примере Cr и Nb на температурный коэффициент диффузии в TiO_2 представлены на рис. 3а. Отметим, что приводятся результаты, полученные для диффузии кислорода в поликристаллическом легированном диоксиде титана. Коэффициент диффузии вычислялся как среднее геометрическое от коэффициентов диффузии вдоль трех взаимно перпендикулярных направлений. Видно, что на логарифмической шкале зависимость коэффициента диффузии от примеси описывается линейным законом, что указывает на экспоненциальную зависимость коэффициента диффузии от концентрации примеси. Нами были рассмотрены примеси, которые наиболее часто упоминаются в экспериментальных работах по изучению коррозионной стойкости легированного сплава $TiAl$. На рис. 3б приведены коэффициенты диффузии кислорода в легированном

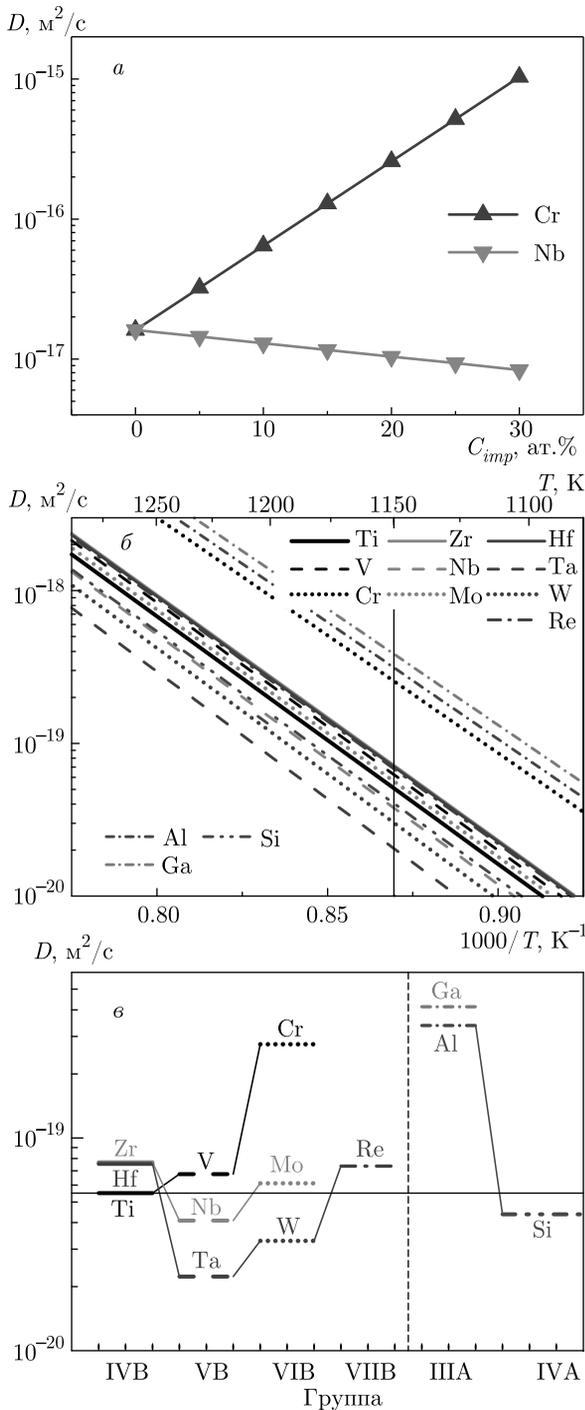


Рис. 3. (В цвете онлайн) Влияние концентрации примеси замещения (Cr и Nb) на коэффициент диффузии кислорода в поликристаллическом TiO_2 (а); теоретический температурный коэффициент диффузии кислорода в легированном оксиде для концентрации примеси, равной 10 ат. % (б); то же при температуре 1150 К (в)

TiO_2 как функция обратной температуры. Для наглядности на рис. 3в представлены значения коэффициента диффузии при температуре 1150 К, которая показана на рис. 3б вертикальной линией. Видно, что Nb, Ta, W и Si приводят к уменьшению кислородной диффузивности, тогда как Al, Ga и Cr, напротив, способствуют повышению диффузии кислорода. Негативный эффект Cr на коррозионную стойкость TiAl и, наоборот, положительный эффект Nb, W и Si был неоднократно подтвержден экспериментально, например, в работах [29,30] и ссылках к ним.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом проекционных присоединенных волн рассчитаны энергии образования кислородной вакансии и миграционные барьеры кислорода в легированном и нелегированном TiO_2 со структурой рутила. Показано, что легирование оксида Zr, Hf, Nb, Ta и W ведет к увеличению энергии образования кислородных вакансий, тогда как влияние Re неоднозначно и зависит от позиции вакансии вблизи примеси. В рамках метода Лэндмана получены аналитические выражения для температурного коэффициента диффузии вдоль двух кристаллографических направлений. Показано, что диффузия кислорода вдоль оси c идет быстрее, чем вдоль a . В целом результаты расчета коэффициентов диффузии вдоль двух осей согласуются с полученными в рамках статистического подхода, а также с экспериментом [24] для медленного механизма диффузии. Впервые изучено влияние ряда примесей переходных металлов и элементов IIIA и IVA групп на температурный коэффициент диффузии кислорода в диоксиде титана. Показано, что Nb, Ta, W и Si способствуют уменьшению кислородной диффузивности в оксиде. Положительный эффект данных примесей на коррозионную стойкость сплава TiAl находится в согласии с имеющимися экспериментальными данными. В целом температурный коэффициент диффузии кислорода в нелегированном TiO_2 ниже на 7–10 порядков в зависимости от температуры, чем соответствующий в сплаве TiAl [6]. Таким образом, метод Лэндмана и статистический подход в сочетании с методами в рамках теории функционала электронной плотности и теории переходного состояния являются полезным инструментом для решения задач, связанных с диффузией кислорода как в оксидах, так и в сплавах.

Финансирование. Работа выполнена в рамках государственного задания ИФПМ СО РАН (FWRW-2019-0031). Численные расчеты проводились на суперкомпьютере СКИФ Cyberia в Томском государственном университете.

ЛИТЕРАТУРА

1. Z. Li and W. Gao, in *Intermetallics Research Progress*, ed. by Y. N. Berdovsky, Nova Sci. Publ., New York (2008), p. 1.
2. S. E. Kulkova, A. V. Bakulin, and S. S. Kulkov, *Latv. J. Phys. Tech. Scil.* **6**, 20 (2018).
3. Y. A. Bertin, J. Parisot, and J. L. Gacougnolle, *J. Less Common Met.* **69**, 121 (1980).
4. А. М. Латышев, А. В. Бакулин, С. Е. Кулькова и др., *ЖЭТФ* **150**, 1140 (2016).
5. Y. Koizumi, M. Kishimoto, Y. Minamino et al., *Phil. Mag.* **88**, 2991 (2008).
6. А. В. Бакулин, С. С. Кульков, С. Е. Кулькова, *ЖЭТФ* **157**, 688 (2020).
7. U. Landman and M. F. Shlesinger, *Phys. Rev. B* **19**, 6207 (1979).
8. U. Landman and M. F. Shlesinger, *Phys. Rev. B* **19**, 6220 (1979).
9. H. H. Wu and D. R. Trinkle, *Phys. Rev. Lett.* **107**, 045504 (2011).
10. H. Wu, *Oxygen Diffusion Through Titanium and Other HCP Metals*, University of Illinois, Urbana, Illinois (2013).
11. D. Connétable, *Int. J. Hydrogen Energy* **44**, 12215 (2019).
12. E. Epifano and G. Hug, *Comput. Mater. Sci.* **174**, 109475 (2020).
13. D. Connétable, A. Prillieux, C. Thenot et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **32**, 175702 (2020).
14. L. Zhu, Q. M. Hu, R. Yang et al. *J. Phys. Chem. C* **116**, 24201 (2012).
15. H. Iddir, S. Ögüt, P. Zapol et al., *Phys. Rev. B* **75**, 073203 (2007).
16. P. E. Blöchl, *Phys. Rev. B* **50**, 17953 (1994).
17. G. Kresse and D. Joubert, *Phys. Rev. B* **59**, 1758 (1999).
18. J. P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3865 (1996).
19. H. J. Monkhorst and J. D. Pack, *Phys. Rev. B* **13**, 5188 (1976).
20. S. C. Abrahams and J. L. Bernstein, *J. Chem. Phys.* **55**, 3206 (1971).
21. G. Henkelman, B. P. Uberuaga, and H. Jónsson, *J. Chem. Phys.* **113**, 9901 (2000).
22. F. P. Ping, Q. M. Hu, A. V. Bakulin et al., *Intermetallics* **68**, 57 (2016).
23. A. V. Bakulin, B. M. Elfimov, E. V. Matiskina et al., *AIP Conf. Proc.* **2310**, 020026 (2020).
24. D. K. Moore, D. J. Cherniak, and E. B. Watson, *Am. Mineral.* **83**, 700 (1998).
25. W. D. Kingery, H. K. Bowen, and D. R. Uhlman, in *Introduction to Ceramic*, John Wiley & Sons, New York (1976), p. 217.
26. P. F. Dennis and R. Freer, *J. Mater. Sci.* **28**, 4804 (1993).
27. J. He, M. W. Finnis, E. C. Dickey et al., *Adv. Sci. Tech.* **45**, 1 (2006).
28. H. Jeong, E. G. Seebauer, and E. Ertekin, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **20**, 17448 (2018).
29. Y. Shida and H. Anada, *Oxid. Met.* **45**, 197 (1996).
30. J. Dai, J. Zhu, C. Chen et al., *J. Alloys Comp.* **685**, 784 (2016).

ЭНЕРГЕТИЧЕСКИЕ ИЗМЕНЕНИЯ РЕЛАКСАЦИОННОЙ ПРИРОДЫ В ВЫСОКОЭНТРОПИЙНЫХ ОБЪЕМНЫХ АМОРФНЫХ СПЛАВАХ

А. С. Макаров ^{a*}, Е. В. Гончарова ^a, Ц. Ч. Цзюао ^{b**}, Н. П. Кобелев ^c, В. А. Хоник ^a

^a Воронежский государственный педагогический университет
394043, Воронеж, Россия

^b Northwestern Polytechnical University
710072, Xi'an, China

^c Институт физики твердого тела Российской академии наук
142432, Черноголовка, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 5 марта 2021 г.,
после переработки 22 марта 2021 г.
Принята к публикации 23 марта 2021 г.

Методом электромагнитно-акустического преобразования проведены исследования релаксации сдвиговой упругости высокоэнтропийных объемных аморфных сплавов в исходном (свежезакаленном) и релаксированном (состаренном) состояниях, на основании которых определены температурные зависимости изменения молярной концентрации дефектов и энтальпия их формирования. Показано, что изохронная кинетика изменения молярной энтальпии высокоэнтропийных объемных аморфных сплавов может быть полностью рассчитана на основе независимых данных изменения молярной концентрации дефектов.

DOI: 10.31857/S0044451021080071

1. ВВЕДЕНИЕ

Несмотря на то что с момента получения первых аморфных сплавов прошло более полувека [1], интерес исследователей к аморфным сплавам не ослабевает. Этот факт вызван целым рядом причин фундаментального и прикладного характера. С позиции фундаментальной науки вопрос разработки теории о природе некристаллических материалов является одной из интереснейших нерешенных проблем в физике конденсированного состояния [2]. Но, с другой стороны, аморфные сплавы также обладают целым рядом уникальных свойств (высокая твердость, обеспечивающая хорошую износостойкость, большие пределы упругости и прочности, высокий предел текучести, высокая вязкость разрушения, низкое внутреннее трение, высокая магнитная проницаемость, низкое значение температурного коэффициента удельного электросопротивления,

коррозионная стойкость, биосовместимость, высокий уровень полировки и др.), которые формируют обширную область для их потенциального применения [3]. В первые годы исследований работали в основном с двойными или тройными системами аморфных сплавов, которые можно было синтезировать в некристаллическом состоянии в форме лент или капель толщиной от 10 до 100 мкм [4]. В дальнейшем было разработано большое количество многокомпонентных систем на основе Mg, Ti, Fe, Co, Ni, Cu, Zr, Pd, La, Pr, Hf, Pt и др., которые можно получить полностью в аморфном состоянии размером от нескольких миллиметров до сантиметров [5]. Такие некристаллические материалы получили общее название объемных аморфных сплавов (bulk metallic glasses, BMGs). Все приведенные выше аморфные сплавы были синтезированы по стандартной технологии, которая заключалась в добавлении относительно небольшого количества вторичных элементов к одному (реже двум) основному элементу. Аморфные сплавы, которые содержат один или два основных элемента, в дальнейшем будем называть обычными аморфными сплавами.

* E-mail: a.s.makarov.vrn@gmail.com

** J. C. Qiao

Около двух десятилетий назад была предложена концепция высокоэнтропийных сплавов (high entropy alloys, HEAs), состоящих как минимум из пяти основных металлических элементов в эквиатомном (одинаковые атомные доли) соотношении или близком к эквиатомному (содержание каждого элемента должно лежать интервале от 5 до 35 ат. %) [6]. Эквиатомная концентрация компонентов обуславливает значительную величину энтропии смешения, которая для высокоэнтропийных сплавов превышает $1.5R$ (R — универсальная газовая постоянная). Большинство высокоэнтропийных сплавов получают в виде однофазных твердых растворов с ГЦК-, ОЦК-, ГПУ-структурами, а также с орторомбической сильнодеформированной кристаллической структурой [7]. Высокоэнтропийные сплавы обладают особыми (в сравнении с обычными конструкционными сплавами) свойствами: высокой твердостью, исключительными износостойкостью и жаропрочностью, хорошей устойчивостью к коррозии и окислению и др. [8]. В начале 2010-х годов были получены полностью аморфные (без кристаллических включений) образцы высокоэнтропийных сплавов [9, 10]. Если первоначально характерный минимальный размер (толщина или диаметр) образцов высокоэнтропийных аморфных сплавов составлял 1–3 мм [8], то впоследствии этот размер достиг 10–15 мм [11, 12], что вполне сопоставимо с объемными аморфными сплавами на основе одного–двух основных компонентов. Такие многокомпонентные полностью некристаллические сплавы стали называть высокоэнтропийными объемными аморфными сплавами (ВЭОАС, или HEVMGs — high entropy bulk metallic glasses). ВЭОАС одновременно сочетают в себе некоторые уникальные характеристики кристаллических высокоэнтропийных сплавов и обычных объемных аморфных сплавов [13]. Таким образом, создание ВЭОАС является очередным шагом исследователей на пути решения фундаментальных вопросов, которые затрагивают механизмы формирования и релаксации аморфных сплавов на микроуровне.

2. ПОСТАНОВКА ЗАДАЧИ

В ВЭОАС, в силу их структурной неупорядоченности, наблюдается структурная релаксация, приводящая к изменению целого ряда физических свойств [12, 13]. В настоящее время общепринятым является подход, согласно которому процесс структурной релаксации рассматривается как совокуп-

ность активируемых переходов между энергетическими уровнями «дефектов» [14]. Под «дефектами» подразумеваются области наномасштаба аморфной матрицы, в которых реализуются термо- или механически активируемые перегруппировки. При этом их конкретная микроскопическая природа остается предметом активных дискуссий. Разработанные модельные представления в той или иной степени позволяют зачастую качественно или реже количественно интерпретировать различные особенности релаксации [15]. Наилучшие результаты дают упругие модели, согласно которым существует линейная взаимосвязь между энергией активации релаксационного перехода и мгновенными упругими характеристиками вещества (нерелаксированным модулем упругости) [16]. Наиболее перспективной упругой моделью нам представляется межузельная теория, которая позволила количественно интерпретировать целый ряд важных явлений в равновесных и переохлажденных расплавах, а также в обычных аморфных сплавах [17, 18].

Межузельная теория берет начало с работы Гранато, в которой был сформулирован механизм плавления кристаллических металлов [19]. Большинство аморфных сплавов образуется в результате переохлаждения расплава. При этом физическая природа плавления металлов и сплавов, вопреки распространенному мнению, остается также неясной [20]. Согласно работе Гранато, плавление возникает вследствие быстрой тепловой генерации специфических дефектов кристаллической структуры — межузельных атомов в гантельной (расщепленной) конфигурации, которые существуют во всех основных кристаллических структурах [21, 22]. Специально поставленные эксперименты подтвердили гипотезу Гранато о механизме плавления металлов [23, 24]. Межузельные гантели остаются идентифицируемыми структурными объектами в жидком состоянии [25], определяя во многом термодинамические свойства жидкости [26]. Аморфный сплав можно рассматривать как кинетически замороженный расплав, содержащий определенную долю «дефектов» типа межузельных гантелей. В отличие от кристаллов, пока не удалось однозначно описать топологическую структуру этих «дефектов» в аморфной матрице, но они могут быть однозначно идентифицированы по тем же свойствам, которые характерны для межузельных гантелей в кристаллических структурах [27, 28]. Структурная релаксация ВЭОАС в рамках такого подхода может быть естественным способом интерпретирована как изменение концентрации «дефектов» типа межузельных

гантелей. В дальнейшем кавычки в слове «дефект» опущены, а под дефектами типа межузельных гантелей будем понимать специфические атомные конфигурации аморфной матрицы, характеризующиеся следующими свойствами: а) высокой чувствительностью к приложенному сдвиговому напряжению, приводящей к сильному уменьшению нерелаксированного модуля сдвига; б) специфическим полем деформации; в) специфическими низкочастотными модами в колебательных спектрах [27, 28].

В настоящее время установлено, что высокая склонность высокоэнтропийных сплавов к аморфизации связана не только с энтропией смешения, а также в значительной степени определяется энтальпией смешения [29, 30]. Энтальпия также является одним из самых распространенных индикаторов структурной релаксации. Поэтому исследования механизмов, ответственных за изменение энтальпии в процессе структурной релаксации, являются весьма актуальными для понимания природы ВЭОАС. Цель настоящей работы — показать, что кинетика изменения энтальпии ВЭОАС может быть полностью количественно интерпретирована на основе данных релаксации сдвиговой упругости.

3. ТЕОРЕТИЧЕСКИЕ ОСНОВЫ

В рамках межузельной теории зависимость модуля сдвига G аморфного материала от концентрации c дефектов типа межузельных гантелей определяется выражением

$$G = \mu e^{-\alpha\beta c}. \quad (1)$$

Здесь μ — модуль сдвига идеального (не содержащего межузельных дефектов) кристаллического аналога, α — безразмерный параметр порядка единицы, связанный с полем деформации дефекта [17], β — сдвиговая восприимчивость ВЭОАС, которая для обоих сплавов была принята равной 20 [18]. Уравнение (1) позволяет определить зависимость концентрации дефектов от температуры, используя температурные зависимости $G(T)$ и $\mu(T)$ упругих модулей:

$$c(T) = \frac{1}{\alpha\beta} \ln \frac{\mu(T)}{G(T)}. \quad (2)$$

Следует обратить внимание на тот факт, что температурная зависимость $\mu(T)$ в уравнении (2) отражает исключительно ангармонизм межатомного взаимодействия в кристалле высокоэнтропийного сплава, а зависимость $G(T)$ — одновременно как ангармонические, так и релаксационные компоненты модуля сдвига ВЭОАС.

Структурная релаксация ВЭОАС в рамках такого подхода может быть интерпретирована как результат рекомбинации и/или генерации дефектов. Другими словами, любое изменение концентрации дефектов (уменьшение и/или увеличение в сравнении с концентрацией в свежезакаленном состоянии) будет приводить к изменению физической величины, которая является индикатором структурной релаксации. Используя уравнение (2), можно определить изменение молярной концентрации дефектов в ходе структурной релаксации с помощью выражения

$$\Delta N_{sr}(T) = \Delta c(T) N_A = \frac{N_A}{\alpha\beta} \ln \left(\frac{G_{rt} \mu(T)}{\mu_{rt} G(T)} \right), \quad (3)$$

где N_A — число Авогадро, G_{rt} и μ_{rt} — модули сдвига при комнатной температуре для аморфного и кристаллического состояний сплава. Для рекомбинации и/или генерации дефектов требуется определенная энтальпия их активации/формирования. В приближении постоянной энтальпии H_f формирования дефектов с помощью уравнения (3) можно определить кинетику изменения молярной энтальпии ВЭОАС в виде

$$\Delta H_{sr}(T) = H_f \Delta N_{sr}(T) = \frac{H_f N_A}{\alpha\beta} \ln \left(\frac{G_{rt} \mu(T)}{\mu_{rt} G(T)} \right). \quad (4)$$

Использование приближения $H_f = \text{const}$ обосновано тем, что величина H_f пропорциональна модулю сдвига G , а его изменение в рассматриваемом диапазоне температур (структурная релаксация) не превышает 10%. Таким образом, полученное в рамках межузельной теории уравнение (4) позволяет спрогнозировать температурную зависимость изменения молярной энтальпии ВЭОАС на основе данных релаксации сдвиговой упругости, но при условии, что известна величина энтальпии H_f формирования дефектов.

С другой стороны, кинетика изменения молярной энтальпии ВЭОАС может быть экспериментально определена методом дифференциальной сканирующей калориметрии (ДСК) при определенной скорости нагрева \dot{T} с помощью соотношения

$$\Delta H_{sr}(T) = \frac{1}{\dot{T}} \int \Delta W(T) dT, \quad (5)$$

где

$$\Delta W(T) = W_{HEBMC}(T) - W_{cr}(T) \quad (6)$$

— разность между температурными зависимостями тепловых потоков ВЭОАС, $W_{HEBMC}(T)$, и аналогичного кристалла, $W_{cr}(T)$ (т. е. кристалла, плавлением и последующей закалкой расплава которого

изготавливался аморфный сплав), которые напрямую измеряются методом ДСК.

4. ОПИСАНИЕ ЭКСПЕРИМЕНТА

Для определения кинетики изменения молярной концентрации дефектов в ходе структурной релаксации с помощью выражения (3) необходимы данные о температурных зависимостях модулей сдвига $G(T)$ и $\mu(T)$. Для их определения был использован бесконтактный метод электромагнитно-акустического преобразования (ЭМАП) [31]. Сущность метода ЭМАП заключается в следующем: через первичную (возбуждающую) катушку пропускается ток ультразвуковой частоты (500–600 кГц), который индуцирует на поверхности металлического образца ВЭОАС размером $5 \times 5 \times 2$ мм³ вихревые токи. В результате, взаимодействуя с магнитным полем постоянного магнита (магнитная индукция 1.2 Тл), вихревой переменный ток создает силу Лоренца, которая вызывает чисто сдвиговые колебания при определенной ориентации образца и катушек в магнитном поле. Далее сдвиговые колебания распространяются по объему исследуемого образца. При совпадении частоты возбуждающего переменного тока с собственной резонансной частотой колебаний образца возникает механический резонанс. Колебания поверхности образца приводят к возникновению высокочастотного переменного сигнала во вторичной (приемной) катушке, сигнал с которой поступает на вход синхронного усилителя. В результате *in-situ* (в реальном времени) компьютерной обработки сигнала синхронного усилителя определяется резонансная частота f возбуждаемых поперечных акустических колебаний с относительной погрешностью 10–100 ppm в зависимости от температуры. Абсолютное значение модуля сдвига рассчитывается с помощью соотношения

$$G(T) = G_{rt} f^2(T) / f_{rt}^2,$$

где G_{rt} — модуль сдвига при 310 К, $f(T)$ и f_{rt} — текущая и начальная (при $T = 310$ К) резонансные частоты. Измерения резонансных частот методом ЭМАП проводились в вакууме (при давлении около 0.01 Па) со скоростью нагрева 3 К/мин.

Калориметрические исследования были выполнены с помощью промышленного дифференциального сканирующего калориметра Hitachi DSC 7020. Тепловые потоки $W_{HEBMG}(T)$ и $W_{cr}(T)$ измерялись со скоростью нагрева 3 К/мин на образцах массой 50–60 мг в проточной атмосфере азота особой

чистоты (99.999%), что позволяло минимизировать поверхностное окисление. Калориметр Hitachi DSC 7020 калибровался с использованием температур и энтальпий плавления высокочистых In, Sn, Pb и Al, что позволяло реализовать измерения теплового потока с погрешностью, не превышающей 5%.

Экспериментальные исследования методами ЭМАП и ДСК были выполнены на образцах ВЭОАС $Zr_{35}Hf_{17.5}Ti_{5.5}Al_{12.5}Co_{7.5}Ni_{12}Cu_{10}$ (ZrHfTiAlCoNiCu) и $Ti_{16.7}Zr_{16.7}Hf_{16.7}Cu_{16.7}Ni_{16.7}Be_{16.7}$ (TiZrHfCuNiBe), которые были получены методом всасывания расплава. Структурное состояние сплавов контролировалось с помощью рентгеновской дифракции. Выбор этих сплавов определялся целым рядом факторов: а) данные сплавы охватывают неэквивалентные и эквивалентные высокоэнтропийные системы; б) данные сплавы обладают относительно высокой конфигурационной энтропией, соответственно 1.77R и 1.79R; в) данные сплавы обладают относительно широким температурным интервалом переохлажденной жидкости; г) данные сплавы в настоящее время являются одними из лучших стеклообразователей для высокоэнтропийных систем. Критические диаметры для ZrHfTiAlCoNiCu и TiZrHfCuNiBe составляют соответственно 18 и 15 мм [11, 14, 32].

5. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

На рис. 1 показаны экспериментальные калориметрические данные и результаты измерений модуля сдвига, которые были реализованы при абсолютно идентичных условиях (скорость нагрева/охлаждения, предварительная термообработка) на образцах ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu в исходном/свежезакаленном (Run1), релаксированном/состаренном (Run2) и кристаллическом (Run3) состояниях. Первый нагрев (Run1) исходного образца осуществлялся до 730 К (окончание интервала переохлажденной жидкости), после чего следовало регулируемое охлаждение до комнатной температуры. В результате такой термообработки было получено релаксированное состояние ВЭОАС. Далее следовал нагрев (Run2) до 870 К релаксированного образца с последующим регулируемым охлаждением до комнатной температуры, в результате которого было получено кристаллическое состояние сплава. Завершающий нагрев (Run3) кристаллического образца также осуществлялся до 870 К.

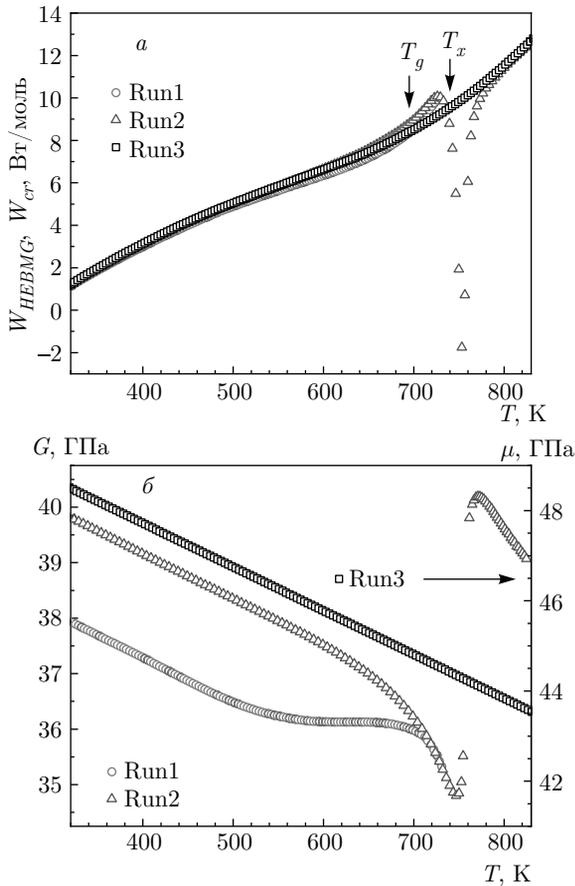


Рис. 1. (В цвете онлайн) Экспериментальные данные температурных зависимостей теплового потока (а) и модуля сдвига (б) для ВЭОАС $ZrHfTiAlCoNiCu$ в исходном (Run1), релаксированном (Run2) и кристаллическом (Run3) состояниях, полученные методами ДСК (а) и ЭМАП (б) при скорости нагрева 3 К/мин. Калориметрические температуры стеклования T_g и начала кристаллизации T_x показаны стрелками

Видно, что в интервале от комнатной температуры до $T \approx 500$ К в исходном состоянии ВЭОАС (Run1) регистрируемый сигнал теплового потока полностью совпадает с базовой линией калориметра, а на температурной зависимости модуля сдвига наблюдается только линейное ангармоническое уменьшение. По мере дальнейшего нагрева исходного состояния ВЭОАС до калориметрической температуры стеклования T_g на данных ДСК фиксируется протяженный экзотермический эффект, а на данных ЭМАП в этом интервале температур наблюдается монотонное увеличение модуля сдвига относительно ангармонической компоненты. Далее, при нагреве выше калориметрической температуры стеклования T_g вплоть до 730 К, на дан-

ных ДСК фиксируется значительный эндотермический эффект, а температурная зависимость модуля сдвига интенсивно убывает вследствие перехода ВЭОАС в состояние переохлажденной жидкости. При нагреве релаксированного образца ВЭОАС (Run2) до $T \approx 595$ К полностью отсутствуют тепловые эффекты в отличие от кристаллического состояния (Run3), а на температурной зависимости модуля сдвига наблюдается только линейное ангармоническое уменьшение. Далее, по мере приближения к T_g , на температурной зависимости модуля сдвига возникает отклонение от линейности, а на данных ДСК начинает регистрироваться незначительный эндотермический эффект. В области стеклования (интервал между температурой стеклования T_g и началом кристаллизации T_x) на данных ДСК фиксируется эндотермический эффект, который близок к таковому для исходного состояния, а температурная зависимость модуля сдвига становится полностью аналогичной температурной зависимости исходного состояния. При дальнейшем нагреве выше T_x на данных ДСК фиксируется значительный экзотермический эффект, имеющий форму острого пика, уменьшающегося при $T \approx 800$ К. При измерении методом ЭМАП выше T_x наблюдается быстрый скачкообразный рост величины модуля сдвига, который обусловлен кристаллизацией аморфной матрицы. Температурные зависимости теплового потока и модуля сдвига кристаллического состояния ВЭОАС (Run3) соответственно отражают только базовую линию калориметра и ангармонизм атомных колебаний.

Представленные на рис. 1 результаты экспериментальных измерений методами ДСК и ЭМАП позволяют определить зависимости разности тепловых потоков $\Delta W(T)$ и абсолютной концентрации дефектов $c(T)$ соответственно по формулам (6) и (2). На рис. 2а показаны результаты расчета разности между температурными зависимостями тепловых потоков ВЭОАС в исходном и кристаллическом состояниях (Run1–Run3), а также в релаксированном и кристаллическом состояниях (Run2–Run3), которые необходимы для калориметрического определения кинетики изменения энтальпии с помощью соотношения (5). На рис. 2б приведены результаты расчета абсолютной концентрации дефектов типа межузельных гантелей ВЭОАС $ZrHfTiAlCoNiCu$ в исходном (Run1) и релаксированном (Run2) состояниях. Видно, что величина абсолютной концентрации дефектов при комнатной температуре для исходного состояния близка к 1.2%. При этом концентрация дефектов в исходном состоянии практически не ме-

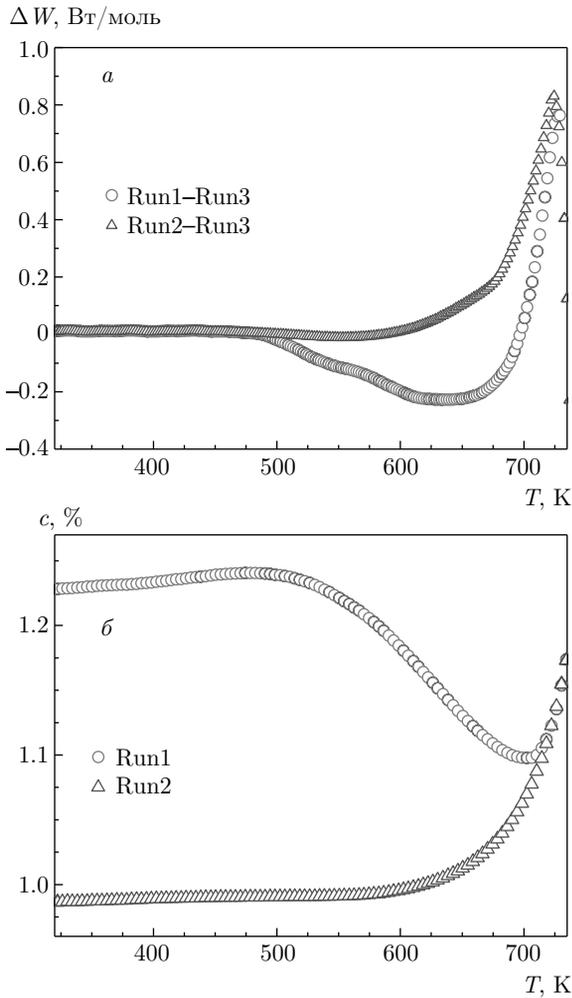


Рис. 2. (В цвете онлайн) Температурные зависимости разности тепловых потоков (а) и абсолютной концентрации дефектов типа межузельных гантелей (б) для ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu в исходном (Run1) и релаксированном (Run2) состояниях, рассчитанные соответственно по формулам (6) и (2)

няется вплоть до температуры $T \approx 500$ К (т. е. когда структурная релаксация отсутствует), что отлично согласуется с нулевой величиной разности тепловых потоков $\Delta W(T)$. Далее следует уменьшение концентрации дефектов, отражающее релаксацию в сторону метастабильного равновесия. Выделяющаяся при этом процессе энергия фиксируется на термограмме ДСК в виде отрицательной разности тепловых потоков $\Delta W(T)$. После отжига исходного ВЭОАС выше T_g (до 730 К) с последующим контролируемым охлаждением до комнатной температуры концентрация дефектов уменьшается на $\Delta c \approx 0.25$ %. В релаксированном состоянии ВЭОАС (Run2) концентрация дефектов почти не меняется вплоть до интервала переохлажденной жидкости, что также

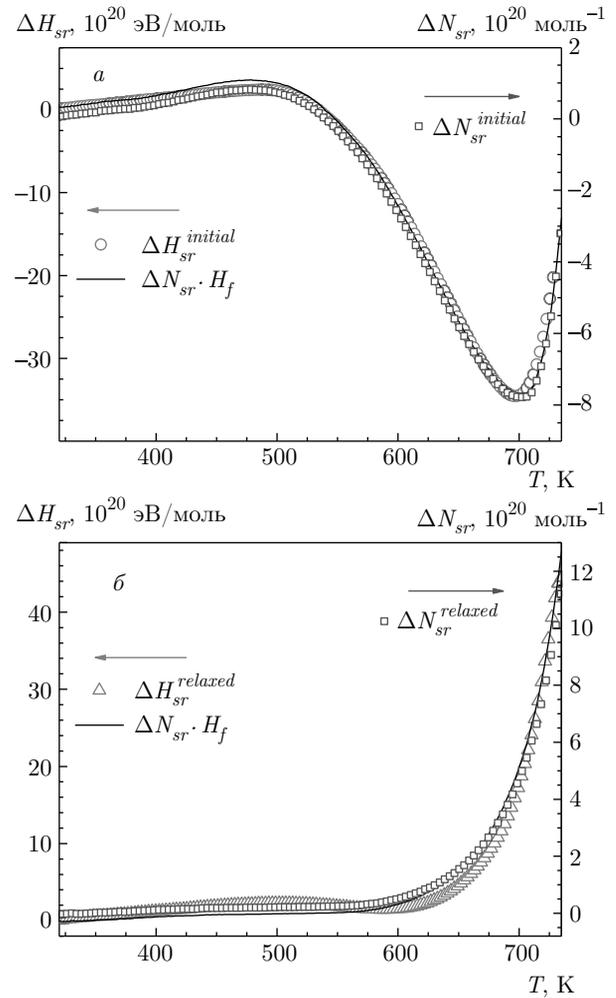


Рис. 3. (В цвете онлайн) Экспериментальные (символы) и рассчитанные (сплошные кривые) по формуле (4) температурные зависимости $\Delta H_{sr}(T)$ для ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu, а также температурные зависимости $\Delta N_{sr}(T)$ для этого же сплава в исходном (а) и релаксированном (б) состояниях

хорошо согласуется с нулевой величиной разности тепловых потоков $\Delta W(T)$. При переходе релаксированного ВЭОАС в состояние метастабильной жидкости возникает быстрый рост концентрации дефектов. Поглощаемая при этом процессе энергия фиксируется на термограмме ДСК в виде положительной разности тепловых потоков $\Delta W(T)$. Вблизи T_g концентрации дефектов в исходном и релаксированном состояниях становятся одинаковыми и при дальнейшем нагреве имеют одинаковые температурные зависимости.

Представленные на рис. 2а зависимости позволяют определить кинетику изменения молярной энтальпии $\Delta H_{sr}(T)$ ВЭОАС с помощью calorimetric relationship (5), а зависимости на

рис. 2б — оценить в рамках межузельной теории кинетику изменения молярной концентрации дефектов $\Delta N_{sr}(T)$ с помощью выражения (3). Соответствующие результаты представлены на рис. 3 для исходного и релаксированного состояний ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu.

Видно, что изменение энтальпии $\Delta H_{sr}^{initial}$ (эксперимент ДСК) для исходного состояния (рис. 3а) в интервале температур $310 \text{ K} < T < 500 \text{ K}$ практически отсутствует, что свидетельствует о постоянстве концентрации дефектов. При дальнейшем нагреве ($500 \text{ K} < T < 700 \text{ K}$) энтальпия реализованного термическим воздействием состояния становится меньше энтальпии исходного состояния ВЭОАС при комнатной температуре ($\Delta H_{sr}^{initial}$ принимает отрицательные значения), что свидетельствует о быстром уменьшении концентрации дефектов. Нагрев в интервале температур $T_g < T < 730 \text{ K}$ вызывает рост величины $\Delta H_{sr}^{initial}$, который является следствием генерации дефектов в состоянии переохлажденной жидкости [17].

Релаксированное состояние ZrHfTiAlCoNiCu (рис. 3б) характеризуется отсутствием сколько-нибудь значимого изменения $\Delta H_{sr}^{relaxed}$ (эксперимент ДСК) вплоть до состояния переохлажденной жидкости. Этот факт подтверждает обоснованность применения термина «релаксированное состояние» ВЭОАС, т.е. искусственно состаренное состояние, в котором структурная релаксация полностью подавлена предшествующей термообработкой. По мере приближения к температуре стеклования фиксируется интенсивный рост величины $\Delta H_{sr}^{relaxed}$, который является следствием быстрой генерации дефектов в состоянии переохлажденной жидкости [17].

Изменение молярной концентрации дефектов $\Delta N_{sr}(T)$ (правая ось ординат на рис. 3) полностью повторяет все особенности температурной зависимости изменения энтальпии (описано выше).

Абсолютная идентичность поведения зависимостей $\Delta H_{sr}(T)$ и $\Delta N_{sr}(T)$ ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu (рис. 3), полученных в результате анализа экспериментальных данных независимых методов исследования (ДСК и ЭМАП), позволяет определить величину энтальпии формирования дефектов H_f в формуле (4). Мы нашли значения H_f , при которых имеется минимальная разница между экспериментальной зависимостью $\Delta H_{sr}(T)$ и зависимостью $H_f \Delta N_{sr}(T)$. Метод наименьших квадратов приводит к величине энтальпии формирования дефекта $H_f = 4.3 \text{ эВ}$. Это значение было использовано для прогнозирования температурной зависимости изме-

нения энтальпии на основе данных изменения молярной концентрации дефектов $\Delta N_{sr}(T)$ как для исходного, так и для релаксированного состояний ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu. Соответствующие результаты расчетов приведены на рис. 3 в виде сплошных кривых. Видно, что расчет хорошо воспроизводит все особенности экспериментальных зависимостей $\Delta H_{sr}(T)$ ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu в исходном и релаксированном состояниях: а) отсутствие изменения в интервале температур $310 \text{ K} < T < 500 \text{ K}$ для исходных образцов; б) отрицательные значения в интервале температур $500 \text{ K} < T < 700 \text{ K}$ для исходных образцов; в) рост в состоянии переохлажденной жидкости для исходных и релаксированных образцов; г) отсутствие изменения вплоть до состояния переохлажденной жидкости для релаксированных образцов. Максимальное отклонение расчетных данных от эксперимента ДСК во всех случаях не превышает или существенно менее 5%, что сопоставимо с погрешностью калориметрического метода.

С другой стороны, одним из основных постулатов межузельной теории Гранато является утверждение о том, что энтальпия H_i формирования гантельного междоузлия (dumbbell interstitial) пропорциональна модулю сдвига G , т.е. $H_i = \alpha \Omega G$, где безразмерный параметр α близок к единице, а Ω — объем, приходящийся на атом [33]. Если для ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu величины α и Ω принять соответственно равными 1 и $2.06 \cdot 10^{-29} \text{ м}^3$, то получим величину энтальпии формирования $H_i = 4.8 \text{ эВ}$. Это значение хорошо согласуется с величиной энтальпии формирования дефекта $H_f = 4.3 \text{ эВ}$, определенной путем сопоставления экспериментальных зависимостей $\Delta H_{sr}(T)$ и $H_f \Delta N_{sr}(T)$. На самом деле безразмерный параметр α , который для оценки величины энтальпии формирования H_i был принят равным единице, требует отдельного всестороннего исследования, но к настоящему времени установлено, что его значение должно лежать в интервале $0.5 \leq \alpha \leq 1$ [17]. Значению энтальпии формирования дефекта $H_i = 4.3 \text{ эВ}$ соответствует величина $\alpha = 0.9$. В принципе, такой способ оценки величины параметра α может быть дополнительным интересным следствием настоящей работы. В любом случае приведенный выше анализ для исходного и релаксированного ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu наглядно показывает, что температурная зависимость изменения энтальпии полностью определяется изменением концентрации дефектов.

Точно такой же анализ можно провести и для эквиатомного ВЭОАС TiZrHfCuNiBe. Соответствующие результаты приведены на рис. 4. Параметры

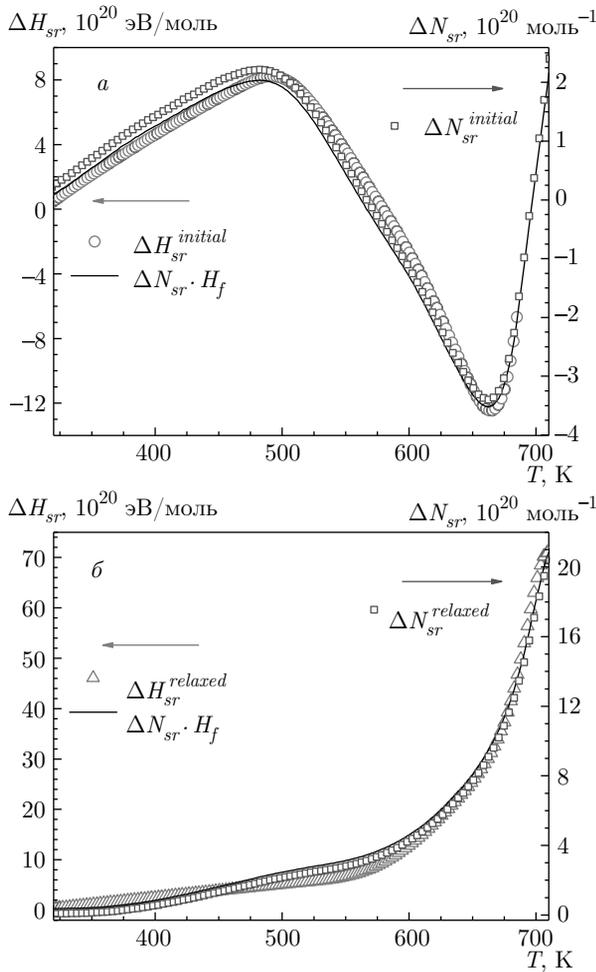


Рис. 4. То же, что на рис. 3, для ВЭОАС TiZrHfCuNiBe

термообработки образцов ВЭОАС TiZrHfCuNiBe: первый нагрев исходного образца осуществлялся до 687 К (окончание интервала переохлажденной жидкости), после чего следовало регулируемое охлаждение до комнатной температуры. В результате такой термообработки было получено релаксированное состояние ВЭОАС. Далее следовал нагрев до 870 К релаксированного образца с последующим регулируемым охлаждением до комнатной температуры, в результате которого было получено кристаллическое состояние сплава. Завершающий нагрев кристаллического образца также осуществлялся до 870 К. Калориметрические температуры стеклования T_g и начала кристаллизации T_x для ВЭОАС TiZrHfCuNiBe составляют соответственно 667 К и 706 К.

Полученные результаты экспериментальных исследований показывают, что изменения энтальпии $\Delta H_{sr}^{initial}$ и концентрации дефектов $\Delta N_{sr}^{initial}$ для исходного состояния (рис. 4а) в интервале температур

$310 \text{ K} < T < 500 \text{ K}$ характеризуются монотонным увеличением, а при дальнейшем нагреве ($500 \text{ K} < T < 667 \text{ K}$) наблюдается более быстрое уменьшение, свидетельствующее о приближении к области стеклования. При нагреве в интервале температур $667 \text{ K} < T < 687 \text{ K}$ снова возрастают величины $\Delta H_{sr}^{initial}$ и $\Delta N_{sr}^{initial}$, что является следствием перехода ВЭОАС TiZrHfCuNiBe в состояние переохлажденной жидкости [17].

Релаксированное состояние TiZrHfCuNiBe (рис. 4б) характеризуется незначительным ростом (около 10 %) величин $\Delta H_{sr}^{relaxed}$ и $\Delta N_{sr}^{relaxed}$ вплоть до состояния переохлажденной жидкости. По мере приближения к T_g фиксируется интенсивный рост этих величин, который также является следствием перехода ВЭОАС TiZrHfCuNiBe в состояние переохлажденной жидкости [17].

Поиск методом наименьших квадратов значения энтальпии формирования дефектов H_f , при котором имеется минимальная разница между экспериментальной зависимостью $\Delta H_{sr}(T)$ и зависимостью $H_f \Delta N_{sr}(T)$, приводит к величине $H_f = 3.5$ эВ. Данное значение энтальпии формирования совместно с экспериментальными результатами изменения молярной концентрации дефектов $\Delta N_{sr}(T)$ позволяет при помощи уравнения (4) спрогнозировать температурную зависимость изменения энтальпии как для исходного, так и для релаксированного состояния ВЭОАС TiZrHfCuNiBe. Соответствующие результаты расчетов приведены на рис. 4 в виде сплошных кривых. Видно, что расчет также хорошо воспроизводит все особенности экспериментальных зависимостей $\Delta H_{sr}(T)$ ВЭОАС TiZrHfCuNiBe в исходном и релаксированном состояниях.

Выполним оценку параметра α в межузельной теории для ВЭОАС TiZrHfCuNiBe. Положим величину энтальпии формирования дефекта $H_f = 3.5$ эВ (поиск методом наименьших квадратов, описанный выше), объем, приходящийся на атом, $\Omega = 1.55 \cdot 10^{-29} \text{ м}^3$, а модуль сдвига $G = 38.6$ ГПа, тогда $\alpha = H_f / \Omega G = 0.94$. Видно, что полученное значение α для ВЭОАС TiZrHfCuNiBe лежит в интервале $0.5 \leq \alpha \leq 1$ [17]. Таким образом, для исследованных ВЭОАС ZrHfTiAlCoNiCu и TiZrHfCuNiBe найдены значения α , соответственно равные 0.9 и 0.94. Этот факт отлично согласуется с выводами, полученными на основе анализа результатов молекулярно-статического моделирования межузельных дефектов и расчетов объемов полиэдров Вороного для атомов, образующих дефекты, и их ближайшего окружения [34]. На основе этого анализа было показано, что отношение дилатационного вклада в упругую энергию

к сдвиговому вкладу для наиболее устойчивых расщепленных межузлий в металлах с ГЦК-решеткой не превышает 0.12–0.13 [34].

6. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Результаты настоящей работы показывают, что уравнение (4) с хорошей точностью (не хуже 5%) описывает температурные зависимости изменения энтальпии исходных (свежезакаленных) и релаксированных (состаренных) ВЭОАС от комнатной температуры и вплоть до завершения интервала переохлажденной жидкости. Другими словами, имеется убедительное согласие между экспериментальными данными ДСК и независимыми результатами оценки изменения концентрации дефектов методом ЭМАП. В связи с этим можно сделать вывод, что физическая причина изменения энтальпии ВЭОАС в ходе структурной релаксации заключается в активируемом процессе изменения системы дефектов межузельного типа в сторону метастабильного равновесного состояния.

Выполнен расчет энтальпии формирования дефектов межузельного типа для ВЭОАС. Полученные значения хорошо согласуются с результатами расчетов при помощи основного уравнения межузельной теории. И, наконец, получены первые независимые оценки параметра α межузельной теории, который связан с полем упругих деформаций дефектов в ВЭОАС. В связи с этим весьма полезными могли бы быть дополнительные экспериментальные исследования согласованности полученных величин α с результатами других методов.

Финансирование. Исследование выполнено при финансовой поддержке гранта Президента РФ для государственной поддержки молодых российских ученых — кандидатов наук (проект МК-1101.2020.2).

ЛИТЕРАТУРА

1. W. K. Jun, R. Willens, and P. Duwez, *Nature* **187**, 869 (1960).
2. W. P. Anderson, *Science* **267**, 1609 (1995).
3. M. Ashby and A. Greer, *Scr. Mater.* **54**, 321 (2006).
4. H. Chen and C. Miller, *Rev. Sci. Instrum.* **41**, 1237 (1970).
5. M. Telford, *Mater. Today*. **7**, 36 (2004).
6. J. W. Yeh, S. K. Chen, S. J. Lin, J. Y. Gan, T. S. Chin, T. T. Shun, C. H. Tsau, and S. Y. Chang, *Adv. Eng. Mater.* **6**, 299 (2004).
7. E. P. George, D. Raabe, and R. O. Ritchie, *Nat. Rev. Mater.* **4**, 515 (2019).
8. M. H. Tsaia and J. W. Yeh, *Mater. Res. Lett.* **2**, 107 (2014).
9. A. Takeuchi, N. Chen, T. Wada, W. Zhang, Y. Yokoyama, A. Inoue, and J. W. Yeh, *Procedia Eng.* **36**, 226 (2012).
10. M. Vaidya, S. Armugam, S. Kashyap, and B. S. Murty, *J. Non-Cryst. Solids* **413**, 8 (2015).
11. H. Y. Ding, Y. Shao, P. Gong, J. F. Li, and K. F. Yao, *Mater. Lett.* **125**, 151 (2014).
12. W. H. Wang, *JOM* **66**, 2067 (2014).
13. Y. Chen, Z. W. Dai, and J. Z. Jiang, *J. Alloys Compd.* **866**, 158852 (2021).
14. L. T. Zhang, Y. J. Duan, T. Wada, H. Kato, J. M. Pelletier, D. Crespo, E. Pineda, and J. C. Qiao, *J. Mater. Sci. Technol.* **83**, 248 (2021).
15. J. C. Qiao, Q. Wang, J. M. Pelletier, H. Kato, R. Casalini, D. Crespo, E. Pineda, Y. Yao, and Y. Yang, *Prog. Mater. Sci.* **104**, 250 (2019).
16. J. C. Dyre, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 953 (2006).
17. V. A. Khonik and N. P. Kobelev, *Metals* **9**, 605 (2019).
18. A. S. Makarov, Yu. P. Mitrofanov, G. V. Afonin, N. P. Kobelev, and V. A. Khonik, *Intermetallics* **87**, 1 (2017).
19. A. V. Granato, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 974 (1992).
20. A. V. Granato, D. M. Joncich, and V. A. Khonik, *Appl. Phys. Lett.* **97**, 171911 (2010).
21. K. H. Robrock, *Mechanical Relaxation of Interstitials in Irradiated Metals*, Springer, Berlin (1990).
22. W. G. Wolfer, in *Comprehensive Nuclear Materials*, ed. by R. J. M. Konings, Elsevier, Amsterdam (2012), p. 14.
23. E. V. Safonova, Yu. P. Mitrofanov, R. A. Konchakov, A. Yu. Vinogradov, N. P. Kobelev, and V. A. Khonik, *J. Phys.: Condens. Matter* **28**, 215401 (2016).
24. Е. В. Гончарова, А. С. Макаров, Р. А. Кончаков, Н. П. Кобелев, В. А. Хоник, Письма в ЖЭТФ **106**, 39 (2017) [*JETP Lett.* **106**, 35 (2017)].

- 25.** K. Nordlund, Y. Ashkenazy, R. S. Averback, and A. V. Granato, *Europhys. Lett.* **71**, 625 (2005).
- 26.** A. V. Granato, *J. Non-Cryst. Solids* **352**, 4821 (2006).
- 27.** E. V. Goncharova, R. A. Konchakov, A. S. Makarov, N. P. Kobelev, and V. A. Khonik, *J. Phys.: Cond. Matter* **29**, 305701 (2017).
- 28.** R. A. Konchakov, A. S. Makarov, N. P. Kobelev, A. M. Glezer, G. Wilde, and V. A. Khonik, *J. Phys.: Condens. Matter* **31**, 385703 (2019).
- 29.** S. Guo and C. T. Liu, *Prog. Nat. Sci.* **21**, 433 (2011).
- 30.** A. Takeuchi, K. Amiya, T. Wada, K. Yubuta, W. Zhang, and A. Makino, *Mater. Trans.* **55**, 165 (2014).
- 31.** А. Н. Васильев, Ю. П. Гайдуков, *УФН* **141**, 431 (1983) [*Sov. Phys. Uspekhi* **26**, 952 (1983)].
- 32.** T. Wada, J. Jiang, K. Yubuta, H. Kato, and A. Takeuchi, *Materialia* **7**, 100372 (2019).
- 33.** Н. П. Кобелев, В. А. Хоник, *ЖЭТФ* **153**, 409 (2018) [*JETP* **126**, 340 (2018)].
- 34.** Р. А. Кончаков, А. С. Макаров, Г. В. Афонин, М. А. Крегова, Н. П. Кобелев, В. А. Хоник, *Письма в ЖЭТФ* **109**, 473 (2019) [*JETP Lett.* **109**, 460 (2019)].

БИСТАБИЛЬНОСТЬ ФОТОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ЭФФЕКТА В ПЛЕНКАХ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКОГО ФУЛЛЕРЕН-ФТАЛОЦИАНИНОВОГО КОМПОЗИЦИОННОГО МАТЕРИАЛА

*С. П. Палто**, *В. В. Лазарев*, *А. Р. Гейвандов*, *С. Г. Юдин*

*Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова Российской академии наук
(ФНИЦ «Кристаллография и фотоника» РАН)*

Поступила в редакцию 28 января 2021 г.,
после переработки 16 февраля 2021 г.
Принята к публикации 24 февраля 2021 г.

Исследованы фотоэлектрические свойства тонких пленок на основе органической композиции из фуллерена (C_{60}), фталоцианина цинка ($ZnPc$) и сегнетоэлектрического сополимера винилиденфторида с трифторэтиленом $P(VDF-TrFE)$. Показано, что наряду с выраженными фотоэлектрическими свойствами, характерными для фуллерен-фталоцианиновых смесей, данному материалу присущи и сегнетоэлектрические свойства. Обнаружено, что сегнетоэлектрическое переключение поляризации приводит к бистабильному переключению фотоэлектрического эффекта с существенным ростом ампер-ваттной чувствительности в одном из поляризованных состояний. Эффект объясняется изменением встроенного локального электрического поля, зависящего от направления вектора сегнетоэлектрической поляризации и действующего внутри полостей молекулярных гетеропереходов $ZnPc/C_{60}$.

DOI: 10.31857/S0044451021080083

1. ВВЕДЕНИЕ

Органические материалы находят все большее применение в устройствах современной фотоники и наноэлектроники. Это светодиодные гетероструктуры, фотовольтаические элементы, детекторы электромагнитного излучения в различных спектральных диапазонах и др. [1–4]. В последнее время особое внимание уделяется преобразователям световой (солнечной) энергии в электрическую [5–8], а также фотодетекторам [9–12]. Привлекательность органических материалов обусловлена не только экономическими факторами, связанными с дешевизной технологических процессов их получения, но и с разнообразием их физико-химических, оптических и фотонных свойств, которыми в широком диапазоне можно управлять как изменением химической структурной формулы материалов, так и созданием композиционных материалов в результате простого смешивания отдельных компонентов.

Несмотря на упомянутые достоинства, существенным недостатком органических фотопреобразователей является все еще недостаточная квантовая эффективность преобразования световой энергии в электрическую. Кроме того, фотодетекторы на основе органических материалов зачастую требуют внешнего электрического смещения. Однако наличие такого смещения неприемлемо, если речь идет, например, о преобразователях света в электрическую энергию. В случае детекторов светового излучения внешнее электрическое смещение также не всегда желательно, так как может приводить к увеличению шума и уменьшению обнаружительной способности. Поэтому важным направлением исследований является поиск таких материалов, которые способствуют увеличению фотоэлектрической эффективности в схемах без внешнего электрического смещения.

Известно, что эффективность преобразования света в электричество у фотовольтаических преобразователей может быть повышена за счет введения в активную область преобразователя поляризуемых сегнетоэлектрических слоев, изменяющих

* E-mail: serguei.palto@gmail.com

внутреннее (встроенное) постоянное электрическое поле, действующее на фотогенерируемые носители заряда. Например, в работах [5,6] с помощью тонкого (около 2 нм) слоя полимерного сегнетоэлектрика удалось повысить эффективность солнечного элемента примерно в 2 раза. В работе [12] использование даже неполяризованного сегнетоэлектрического сополимера винилиденфторида с трифторэтиленом P(VDF-TrFE) в качестве добавки также увеличивает эффективность преобразования. Почти десятикратное возрастание фототока наблюдалось в слоевой гетероструктуре «фталоцианин меди CuPc – сегнетоэлектрик P(VDF-TrFE)» [13] после ее поляризации внешними импульсами электрического напряжения.

В настоящей работе исследуется композиционный материал на основе органических полупроводников фуллерена C₆₀ и фталоцианина цинка ZnPc, смешанных с сополимером P(VDF-TrFE). Использование данного композиционного материала приводит к принципиальным отличиям исследуемой системы от структуры, изученной ранее [13]. Если в работе [13] изучалась сложная слоевая структура, то в данном случае имеется лишь один слой из композиционного материала. Это не только упрощает процесс приготовления фоточувствительных элементов, но и, как показано ниже, приводит к принципиальным изменениям в формировании встроенного электрического поля и его влиянии на фотовольтаические свойства. Следует, однако, отметить, что наличие значительного количества сегнетоэлектрического сополимера P(VDF-TrFE), который является хорошим диэлектриком, приводит к тому, что фотоэлектрический отклик имеет место лишь в случае использования модулированного светового потока. Это делает затруднительным применение данного материала в устройствах для преобразования солнечного света в электрическую энергию. По аналогии с пьезоэлектрическими материалами, где отклик возникает на нестационарный поток излучения, данный материал может найти применение главным образом в фотоэлектрических детекторах для регистрации модулированного света. В последнем случае важным параметром становится обнаружительная способность детекторов данного типа. Улучшение диэлектрических свойств описываемого материала по сравнению с похожими фталоцианин-фуллереновыми комплексами должно, на наш взгляд, способствовать улучшению обнаружительной способности [14], так как устраняется канал возникновения шума, связанный с протеканием постоянного тока.

2. ОБРАЗЦЫ И МЕТОДЫ

Композиционный материал состоит из трех составляющих в следующем весовом соотношении: 1) 54% фталоцианина цинка ZnPc (НИОПИК); 2) 12% фуллерена C₆₀ (Sigma Aldrich); 3) 34% сополимера винилиденфторида с трифторэтиленом P(VDF-TrFE) молекулярного состава 65%/35% VDF/TrFE от компании Solvey (рис. 1).

Фотоэлектрические свойства композитов на основе ZnPc и фуллеренов без P(VDF-TrFE) подробно изучались нами в работах [14, 15]. Сополимер P(VDF-TrFE) известен своими сегнетоэлектрическими свойствами (значение переключаемой спонтанной поляризации, согласно нашим измерениям, составляет примерно 0.06 Кл/м²), однако его сравнительно малая доля (34 вес. %) априори не гарантирует наличия сегнетоэлектрических свойств.

Пленка толщиной 85 ± 5 нм из композиционного материала формировалась на подложке из кварцевого стекла с предварительно нанесенным прозрачным электродом из SnO₂ методом одновременного термического испарения в вакууме порошков исходных веществ (использовался вакуумный пост ВУП-4). Далее на поверхность композиционной пленки напылялся алюминиевый электрод в виде полоски шириной 4 мм. Таким образом, формировался конденсаторный элемент с площадью перекрытия электродов 5×4 мм². Отметим также, что для увеличения проводимости электродные пленки SnO₂, которые наносились на кварцевые подложки методом пиролиза, были легированы донорными примесями сурьмы.

Указанная выше толщина органической пленки была измерена с помощью микроинтерферометра Линника МИИ-4М (ЛОМО) вне области перекрытия электродов. Эти же безэлектродные области образца использовались для измерения спектров оптической плотности пленки с помощью оптоволоконного спектрометра AvaSpec 2048.

Для измерений фотоэлектрических свойств использовалась установка на основе монохроматора МДР-23 (ЛОМО), управляемого специально созданным нами программным обеспечением PhysLab, в котором реализован комплекс виртуальных приборов, использующий 16-разрядные аналого-цифровые и цифро-аналоговые преобразователи. В качестве источника света на входе монохроматора использовалась галогенная лампа КГМ 12-100 (12 В, 100 Вт). Этот свет модулировался механическим прерывателем с частотой 320 Гц. Модулированный свет с выхода монохроматора возбуждал в образ-

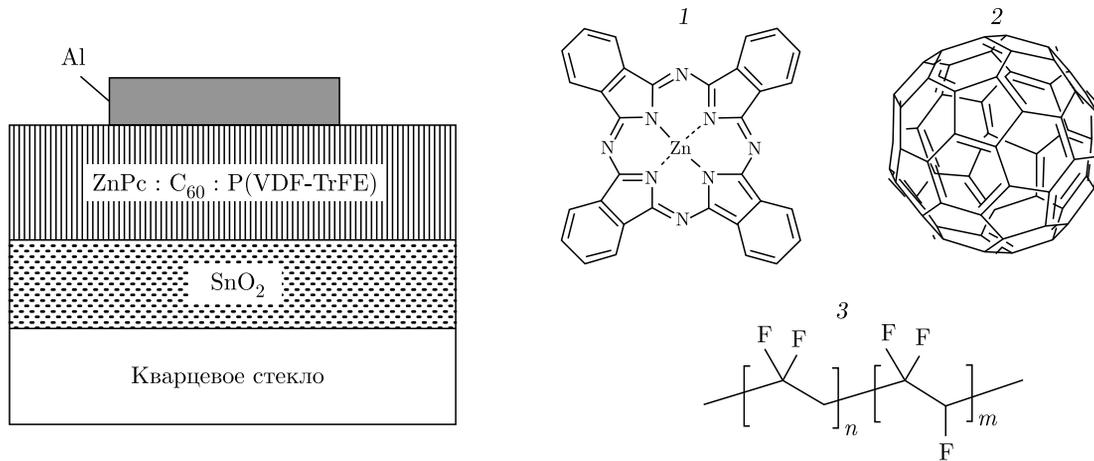


Рис. 1. Схема фотоэлектрического элемента и структурные формулы компонентов, входящих в композиционный сегнетоэлектрический материал $\{\text{ZnPc} : \text{C}_{60} : \text{P}(\text{VDF-TrFE})\}$: 1 — фталоцианин цинка ZnPc ; 2 — фуллерен C_{60} ; 3 — сополимер винилиденфторида с трифторэтиленом $\text{P}(\text{VDF-TrFE})$

це фотоэлектрический сигнал, который регистрировался методом синхронного детектирования. Метод синхронного детектирования реализован программно (PhysLab) с использованием 16-битного аналого-цифрового преобразователя (частота дискретизации сигнала до 200 кГц). Для калибровки установки, с целью получения абсолютных данных об ампер-ваттной чувствительности пленок, использовался калиброванный в широком спектральном диапазоне (200–1100 нм) кремниевый фотодиод (RS No. 564-37, Germany). В этой же установке была предусмотрена возможность подключения к образцу генератора импульсов напряжения для поляризации композиционной пленки.

Измерения сегнетоэлектрических свойств проводились на установке, включающей генератор напряжения треугольной формы, преобразователь ток–напряжение и цифровой осциллограф. К образцу прикладывалось напряжение треугольной формы на частоте 2 Гц с амплитудой до 20 В. Возникающий в электрической цепи ток преобразовывался в электрическое напряжение и регистрировался цифровым осциллографом. Обработка данных заключалась в разделении различных вкладов в токовом отклике, таких как линейный омический вклад U/R , где U — электрическое напряжение, R — омическое сопротивление образца, и ток смещения

$$\frac{dD}{dt} = C \frac{dU}{dt} + \frac{dP_s}{dt},$$

где D — нормальная к пленке компонента вектора электрической индукции, C — электрическая ем-

кость при малых электрических напряжениях, а P_s — сегнетоэлектрическая поляризация. В свою очередь, из тока смещения выделялся характерный нелинейный вклад dP_s/dt , связанный с сегнетоэлектрическим переключением пленки, интегрирование которого позволяло получать петли гистерезиса сегнетоэлектрического переключения.

3. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Рассмотрим сначала диэлектрические свойства нашего образца в сравнительно слабых электрических полях, когда образец ведет себя как линейный диэлектрик. Эти свойства иллюстрируются данными измерений частотной зависимости электрической емкости образца (C) и тангенса угла диэлектрических потерь ($\text{tg } \delta$) при амплитуде электрического напряжения на образце до 1 В (рис. 2). С учетом толщины пленки ($d = 85$ нм) и площади перекрытия электродов ($S = 20$ мм²) легко найти, что в области низких частот (0–5 кГц) действительная часть комплексной диэлектрической проницаемости лежит в диапазоне 5.3–4.4. При этом диэлектрические потери, определяемые тангенсом угла диэлектрических потерь

$$\text{tg } \delta = \frac{1}{\omega CR},$$

соответствуют уровню $5 \cdot 10^{-2}$ и объясняются проводимостью материала, которая из данных на рис. 2 оценивается значением $5 \cdot 10^{-9}$ Ом⁻¹ · м⁻¹. Для

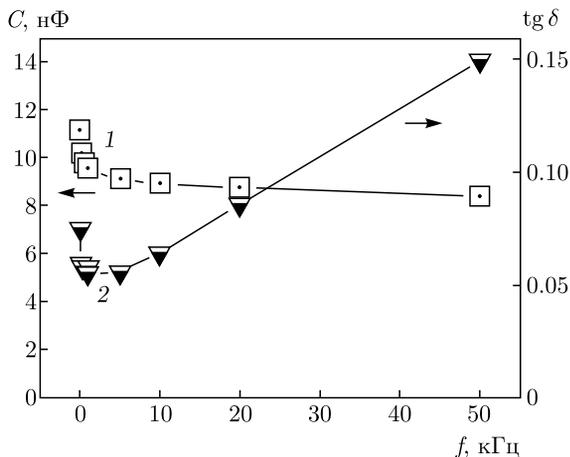


Рис. 2. Частотные зависимости электрической емкости (1) и диэлектрических потерь (2) для композиционной пленки толщиной 85 нм между электродами SnO₂ и Al

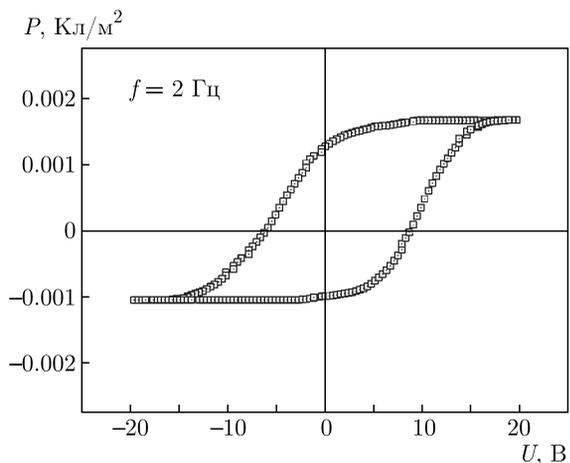


Рис. 3. Петля сегнетоэлектрического переключения поляризации для образца композиционной пленки из материала ZnPc : C₆₀ : P(VDF-TrFE), полученная в результате интегрирования кривой токового отклика по периоду прикладываемого электрического напряжения треугольной формы с частотой 2 Гц

сравнения отметим, что относительная диэлектрическая проницаемость сегнетоэлектрического сополимера P(VDF-TrFE) в этой же области частот примерно в два раза больше. На частотах свыше 5 кГц наблюдается рост диэлектрических потерь, что указывает на существование релаксационных процессов, которые могут быть связаны как с коллективным движением диполей сегнетоэлектрического сополимера, так и с релаксационными процессами в областях локализации объемных гетеропереходов ZnPc-C₆₀.

В сравнительно сильных электрических полях, когда электрическое напряжение на пленке превышает 10 В, диэлектрический отклик становится сильно нелинейным с выраженной петлей гистерезиса, характерной для сегнетоэлектриков (рис. 3). Как видно на рисунке, петля не является симметричной. Разница в абсолютных значениях коэрцитивного электрического напряжения $U_{c+|P=0} = 8.6$ В для переключения в состояние с положительной поляризацией и напряжением $U_{c-|P=0} = -6.3$ В для перехода в состояние с отрицательной величиной поляризации составляет 2.3 В. Это объясняется как различием электронных свойств электродов Al и SnO₂, так и особенностями переключения встроенного электрического поля, что более детально рассматривается ниже. Известно, что разница между работами выхода для разных типов электродов приводит к встроенному электрическому полю в зазоре между ними [5, 14]. Поскольку работа выхода из SnO₂ превышает работу выхода из Al, встроенное поле направлено от алюминиевого электрода к электроду SnO₂. Из петли гистерезиса легко также оценить коэрцитивное поле $8.8 \cdot 10^7$ В/м и переключаемую поляризацию $P \cong 1.2 \cdot 10^{-3}$ Кл/м². Хотя это значение поляризации примерно в 5 раз меньше значения, измеренного нами для чистого сополимера P(VDF-TrFE), оно все же является весьма значительным. Соответствующее электрическое поле деполяризации (P/ϵ_0) достигает внушительных значений $1.3 \cdot 10^8$ В/м, и можно ожидать существенного влияния этого поля на фотоэлектрические свойства композиционной пленки.

На рис. 4 показано изменение амплитуды фотоэлектрического отклика во времени по мере кратковременной поляризации образца импульсами электрического напряжения длительностью в одну секунду (стрелками показаны моменты времени поляризации образца). Начальный момент времени ($t = 0$) соответствует свежеприготовленному (неполяризованному) образцу. Ампер-ваттная чувствительность в этом случае составляет $1.1 \cdot 10^{-3}$ А/Вт. Эта величина близка к известным значениям для фуллерен-фталоцианиновых комплексов [14]. Поляризация образца положительным импульсом напряжения (электрический потенциал отсчитывается по отношению к электроду SnO₂) приводит к почти десятикратному росту ампер-ваттной чувствительности, которая достигает значений, близких к 10^{-2} А/Вт.

Последующая переполяризация образца отрицательными импульсами приводит к снижению ампер-ваттной чувствительности, которая становится

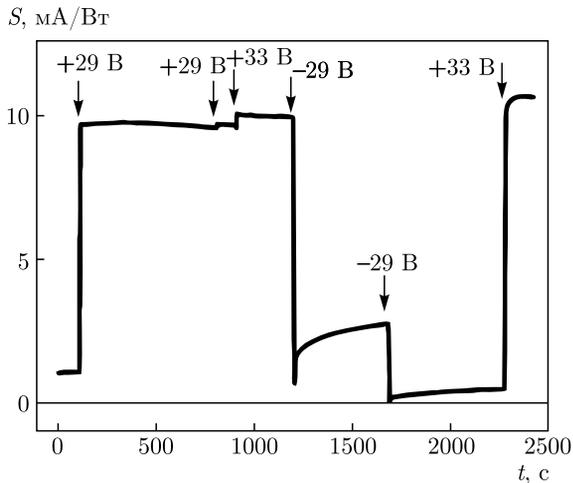


Рис. 4. Эволюция ампер-ваттной чувствительности (длина волны $\lambda = 610$ нм) во времени при различных состояниях после поляризации образца коротким импульсом напряжения (длительность импульса 1 с; стрелками показаны моменты поляризации). Знак поляризующего электрического напряжения определяется по отношению к электроду SnO_2

даже меньше, чем для свежеприготовленного образца. Следует, однако, отметить, что одного отрицательного импульса длительностью 1 с недостаточно для полной реполяризации пленки. Это объясняется дисперсией времен релаксации [16] и необходимостью достаточно длительного или многократного воздействия внешнего поляризирующего поля для переключения поляризации во всем объеме пленки. Как видно на рис. 4, лишь повторное воздействие отрицательного поляризирующего импульса ($U = -29$ В, $t \approx 1600$ с) обеспечивает значение фоточувствительности ниже, чем у свежеприготовленного образца.

Сразу после воздействия внешнего поляризирующего поля (переключения поляризации) наблюдается некоторая релаксация, которая характеризуется множеством времен, зависящих от амплитуды и длительности воздействия реполяризующих импульсов напряжения, что, как уже отмечалось, характерно для $\text{P}(\text{VDF-TrFE})$. Непосредственно после выключения поляризирующего электрического поля наблюдается сравнительно быстрая (порядка 10 с) релаксация уровня фотоэлектрического отклика. Тем не менее она существенно медленнее максвелловской релаксации (в нашем случае оценка времени максвелловской релаксации дает значение 10^{-2} с). Поэтому мы связываем наблюдаемую релаксацию ампер-ваттной чувствительности главным образом с пространственной неоднородностью поли-

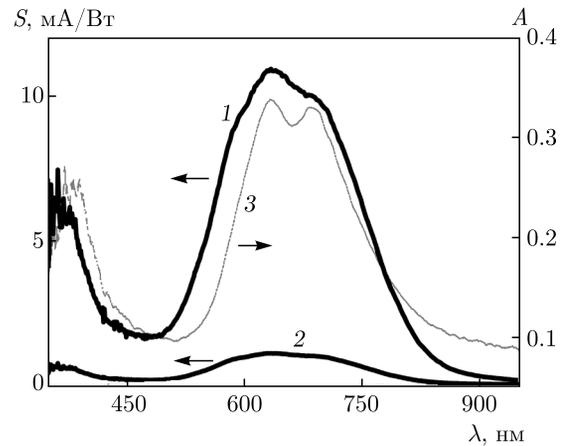


Рис. 5. (В цвете онлайн) Спектры ампер-ваттной чувствительности (1, 2) и оптического поглощения (3). Кривые 1 и 2 соответствуют состояниям с противоположными поляризациями, полученными при поляризации образца импульсами положительного ($U = +30$ В) и отрицательного ($U = -30$ В) напряжения

мерной сегнетоэлектрической матрицы, когда существует определенная доля материала, для которой процесс реполяризации не завершается на временном промежутке действия поляризирующего импульса, и эта доля материала релаксирует в исходное состояние.

Это предположение подтверждается уже упомянутым фактом, что характер релаксации зависит от амплитуды и длительности воздействия реполяризующих импульсов напряжения. Например, многократное воздействие поляризирующих импульсов приводит к более высокому и стабильному уровню сегнетоэлектрической поляризации и, соответственно, фоточувствительности. В наших экспериментах после воздействия положительных поляризирующих импульсов длительностью 1–2 с выход на стабильный уровень, составляющий не менее 90 % от максимального уровня фоточувствительности, происходил примерно в течение нескольких часов. Процесс переключения можно повторять многократно. Таким образом, можно говорить о бистабильном переключении ампер-ваттной чувствительности фотоэлемента.

Спектральные зависимости ампер-ваттной чувствительности фотоэлемента в двух состояниях показаны на рис. 5. В видимой области спектра максимальное значение фотоэлектрического эффекта имеет место на длине волны, которая совпадает с длиной волны максимального поглощения ZnPc ($\lambda = 634$ нм). Следует отметить, что и в более ко-

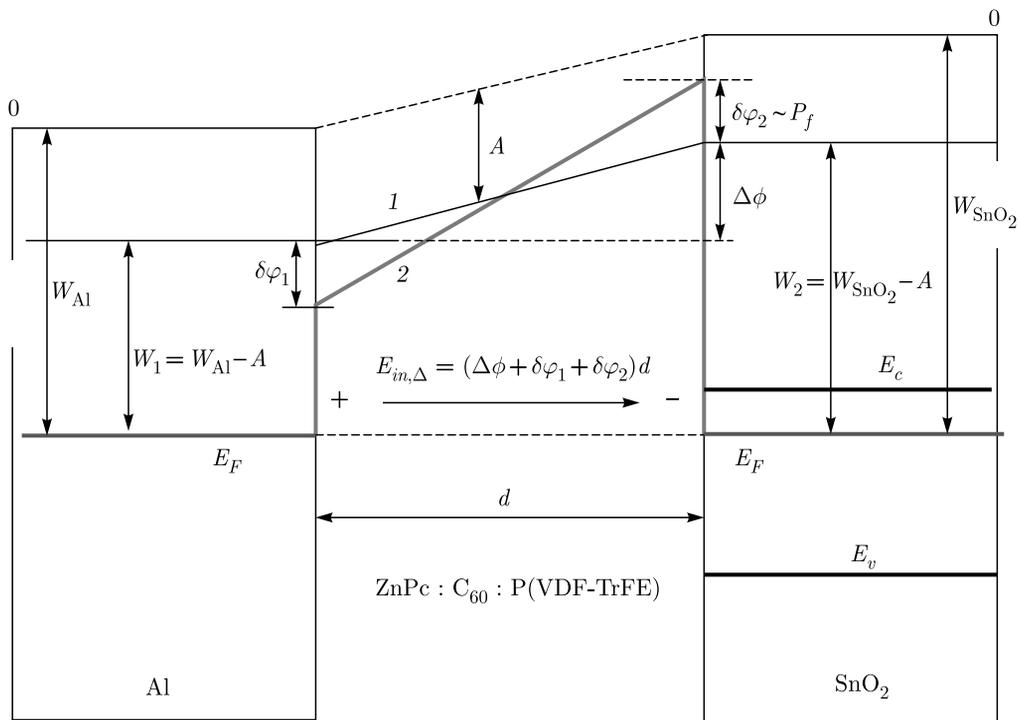


Рис. 6. (В цвете онлайн) Энергетическая диаграмма, поясняющая возникновение и изменение встроенного электрического поля $E_{in,\Delta}$ внутри пленки за счет влияния сегнетоэлектрической поляризации на энергетические барьеры выхода электрона из электродов Al и SnO₂. Обозначения: W_{Al} и W_{SnO_2} — работы выхода электрона в вакуум соответственно из алюминия и двуокси олова; A — энергия сродства электрона в композиционном материале (положение дна зоны проводимости по отношению к вакууму); E_F — уровень Ферми; E_c и E_v — соответственно уровни границ зоны проводимости и валентной зоны в SnO₂

ротковолновой области (500–590 нм), где поглощение света молекулами фталоцианина существенно меньше, а поглощение молекулами C₆₀ мало из-за их существенно меньшей концентрации в композиционной смеси, фотоэлектрический эффект все же остается весьма значительным. Последнее указывает на важность смешанных электронных состояний, связанных с взаимодействием молекул фуллерена и фталоцианина [15]. Аналогично объясняется и максимум фотоэлектрического эффекта в коротковолновой области спектра вблизи длины волны 365 нм, которая соответствует перекрытию коротковолновой *B*-полосы (полоса Сорэ) ZnPc (340 нм) и полосы фуллерена C₆₀ с максимумом поглощения примерно на 390 нм.

Эффект бистабильного переключения ампер-ваттной чувствительности может быть объяснен в рамках модели множества объемных гетеропереходов, образуемых молекулами ZnPc и C₆₀ [14], которые находятся в переключаемом встроенном локальном поле, зависящем от поляризации сегнетоэлектрика.

Рассмотрим простейшую модель, иллюстрируемую энергетической диаграммой для структуры Al–пленка–SnO₂ на рис. 6 и различными вкладками в локальное поле, рис. 7. Согласно данным работы [17], дно зоны проводимости SnO₂ лежит на уровне $E_c = -4.9$ эВ, а уровень валентной зоны соответствует $E_v = -8.5$ эВ по отношению к вакууму (0 эВ). Так как наша пленка SnO₂ легирована донорными примесями сурьмы, уровень Ферми E_F должен быть выше середины запрещенной зоны, т. е. ближе к зоне проводимости, и отсчитываемую от этого уровня работу выхода W_{SnO_2} можно оценить в диапазоне 5–6.5 эВ. С другой стороны, работа выхода W_{Al} электрона из Al не превышает 4.2 эВ. Таким образом, при образовании контактного перехода Al–пленка–SnO₂ установление термодинамического равновесия и выравнивание уровней Ферми будет сопровождаться перетеканием электронов от алюминиевого электрода к электроду из SnO₂ с образованием контактной разности потенциалов

$$\Delta\phi = W_{SnO_2} - W_{Al} > 0.8 \text{ В.} \tag{1}$$

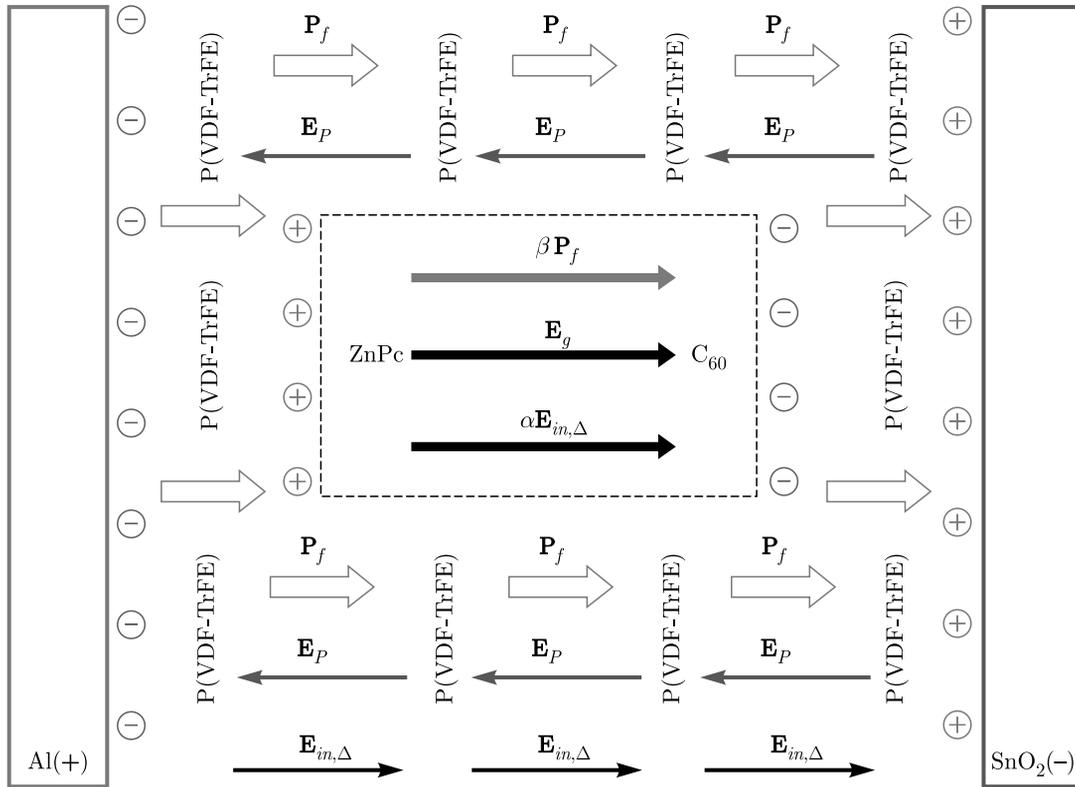


Рис. 7. (В цвете онлайн) Схема, поясняющая различные вклады в локальное электрическое поле внутри полости, содержащей молекулярный гетеропереход ZnPc/C₆₀ (полость условно ограничена штриховой линией). ZnPc, C₆₀ и P(VDF-TrFE) — см. 1, 2, и 3 на рис. 1; $\alpha E_{in,\delta}$ — вклад в локальное поле от поля $E_{in,\Delta}$, связанного с разностью работ выхода электрона из электродов Al и SnO₂ (в результате выравнивания уровней Ферми поверхность Al оказывается под более высоким электрическим потенциалом (+) по сравнению с потенциалом (-) на поверхности SnO₂, см. рис. 6); βP_f — вклад в локальное поле от сегнетоэлектрической поляризации; E_g — вклад в локальное поле, связанный с образованием молекулярного гетероперехода; E_p — поле деполяризации внутри сегнетоэлектрического сополимера. Показан случай после поляризации сегнетоэлектрического сополимера положительным напряжением (положительный потенциал был приложен к Al, что привело к состоянию, когда вектор P_f направлен к электроду SnO₂)

Эта разность потенциалов приводит к значению среднего встроенного поля $E_{in} = \Delta\phi d$, направленного от Al к SnO₂ (d — толщина пленки).

Следует, однако, отметить, что сказанное справедливо лишь в случае неполярной пленки. В случае поляризованной сегнетоэлектрической пленки ситуация меняется по двум основным причинам. Во-первых, из-за наличия сегнетоэлектрической поляризации P_f возможно изменение контактной разности потенциалов. Например, если вектор сегнетоэлектрической поляризации направлен от электрода SnO₂ к электроду Al, то поле деполяризации будет направлено в обратном направлении (от Al к SnO₂). В этом случае положительный поляризационный заряд (связанный с молекулами сополимера) вблизи Al-электрода должен способствовать уменьшению энергетического барьера для выхода электронов из Al на величину $\delta\varphi_1$, а

соответствующий отрицательный заряд на границе SnO₂ — увеличению барьера на $\delta\varphi_2$. Таким образом, среднее встроенное поле, связанное с контактной разностью потенциалов, модифицируется, и в рамках простейшей линейной модели это поле можно представить в виде

$$E_{in,\Delta} = [\Delta\phi \pm (\delta\varphi_1 + \delta\varphi_2)] d, \quad (2)$$

где знак «±» относится к состояниям с разными направлениями вектора сегнетоэлектрической поляризации. Отметим также, что в отличие от ситуации в работе [13], где наличие поляризации приводит к возникновению поля вне слоя сегнетоэлектрика, в данном случае речь идет об электрическом поле внутри сегнетоэлектрической матрицы. Подчеркнем, что нами рассматривается простейшая модель, когда свободный и поляризационный (связанный) заряды локализируются вблизи границ пленки, в об-

ласти непосредственного контакта с электродами. Мы не учитываем изгиба зон вблизи границ. Поэтому формулу (2) следует рассматривать как соотношение, позволяющее лишь качественно анализировать вклад во встроенное электрическое поле, действующее в объеме пленки. Кроме того, важнейшим моментом является то, что наша пленка неоднородна, а фотоэлектрический эффект возникает благодаря объемным молекулярным гетеропереходам ZnPc/C₆₀. Поэтому мы обязаны анализировать поле, действующее внутри некоторой полости сегнетоэлектрической матрицы, где локализованы молекулярные гетеропереходы ZnPc/C₆₀ (см. рис. 7). Последнее является чрезвычайно важным обстоятельством. Дело в том, что электрическое поле, обусловленное сегнетоэлектрической поляризацией, внутри полости направлено так же, как и вектор сегнетоэлектрической поляризации, т. е. оно противоположно полю деполяризации внутри сегнетоэлектрических кластеров сополимера. В итоге мы имеем достаточно сложную ситуацию, когда вектор локального поля \mathbf{E}_{loc} в полости формируется из трех принципиально разных вкладов:

$$\mathbf{E}_{loc} = \alpha \mathbf{E}_{in,\Delta} + \beta \mathbf{P}_f + \mathbf{E}_g. \quad (3)$$

Здесь первый вклад связан с контактной разностью потенциалов и описывается соотношением (2) с учетом положительного фактора локального поля α , зависящего от геометрии полости и эффективных диэлектрических проницаемостей, присущих матрице P(VDF-TrFE) и гетеропереходам ZnPc/C₆₀. Второй вклад пропорционален вектору сегнетоэлектрической поляризации, где β — положительный коэффициент, зависящий от эффективной поляризуемости кластеров ZnPc/C₆₀ и геометрии полости, наконец, третий вклад — это поле, связанное с самим гетеропереходом, обусловленным донорными свойствами ZnPc и акцепторными свойствами C₆₀. Если все три вектора, $\mathbf{E}_{in,\Delta}$, \mathbf{P}_f и \mathbf{E}_g , действуют в одном направлении, то реализуется наиболее сильное встроенное локальное электрическое поле и экситоны, возбуждаемые светом в области гетеропереходов, имеют увеличенную вероятность диссоциации на электроны и дырки, которые, двигаясь в данном локальном поле, и создают наиболее интенсивный фотоэлектрический отклик. В данном случае, так как сегнетоэлектрическая матрица является диэлектриком, при недостаточной концентрации ZnPc и C₆₀ возникающий фототок является исключительно током смещения, который может наблюдаться только при использовании модулированного светового потока. Отметим, что из-за случайного ха-

рактера образования гетеропереходов направление поля \mathbf{E}_g различно в разных полостях сегнетоэлектрической матрицы, занимаемых гетеропереходами ZnPc/C₆₀. Поэтому лишь около половины от всех гетеропереходов дают вклад в результирующий фототок в направлении поля, обусловленного первыми двумя членами в выражении (3).

В наших экспериментах усиление fotocувствительности наблюдается после поляризации сегнетоэлектрической матрицы положительным электрическим напряжением (на электроде Al потенциал положительный по отношению к SnO₂). В этом случае вектор поляризации направлен от Al к SnO₂, а поле деполяризации в обратном направлении, см. рис. 7. Такое направление вектора поляризации, в отличие от ситуации, изображенной на рис. 6, должно приводить к уменьшению контактной разности потенциалов и, соответственно, к уменьшению вклада от первого члена в соотношении (3).

Таким образом, наблюдаемое усиление fotocувствительности после поляризации положительным электрическим напряжением следует связывать исключительно со вторым членом в выражении (3). При изменении знака поляризующего поля на отрицательный, знак второго члена изменяется, и можно было бы ожидать инверсии знака фотоэлектрического отклика, который, благодаря фазочувствительному детектированию, регистрируется нашей измерительной системой. Однако после поляризации сегнетоэлектрической матрицы отрицательными импульсами напряжения смена знака фотоотклика не наблюдается, а имеет место лишь сильное подавление фотоэлектрической чувствительности. Такое поведение в данном случае объясняется ростом контактной разности потенциалов в соответствии со случаем, показанным на рис. 6, и увеличением абсолютного значения первого члена в выражении (3). Но так как в этом случае второй член в этом выражении имеет знак, противоположный знаку первого члена, реализуется ситуация, когда первый и второй вклады взаимно компенсируются. В этом случае фототок, связанный с третьим членом в соотношении (3), возникнуть не может. Объемные кластеры ZnPc/C₆₀ случайно ориентированы в объеме пленки, поэтому результирующий фототок во внешней цепи, являющийся суммой элементарных разнонаправленных токов в полостях, занимаемых гетеропереходами, оказывается близким к нулю. Данная модель позволяет понять основные закономерности наблюдаемого бистабильного переключения fotocувствительности.

4. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, нами продемонстрирован композиционный материал на основе фуллерена, фталоцианина и сополимера винилиденфторида с трифторэтиленом, обладающий одновременно сегнетоэлектрическими и фотоэлектрическими свойствами. В зависимости от направления переключаемой сегнетоэлектрической поляризации тонкие пленки из данного материала, помещенные между электродами SnO₂ и Al, демонстрируют более чем в 10 раз различающиеся значения фотоэлектрического отклика. Значение ампер-ваттной чувствительности в одном из заполяризованных состояний достигает 10 мА/Вт, что, с учетом спектрального диапазона, охватывающего ближний УФ- и видимый диапазоны, привлекательно для практического использования в фотодетекторах. Бистабильное переключение фотоэлектрического отклика объясняется в рамках модели переключения встроенного локального поля, которое, в зависимости от направления вектора сегнетоэлектрической поляризации, либо усиливает, либо ослабляет вклад от встроенного электрического поля, связанного с разными работами выхода электрона из Al и SnO₂.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования в рамках выполнения работ по Государственному заданию Федерального научно-исследовательского центра «Кристаллография и фотоника» Российской академии наук.

ЛИТЕРАТУРА

1. Yi-Lu Chang and Zheng-Hong Lu, *J. Display Techn.* **9**, 459 (2013).
2. P. Peumans, S. Uchida, and S. R. Forrest, *Nature* **425**, 158 (2003).
3. H.-W. Lin, S.-Y. Ku, H.-C. Su et al., *Adv. Mater.* **17**, 2489 (2005).
4. O. Hofmann, P. Miller, P. Sullivan et al., *Sens. Actuators B* **106**, 878 (2005).
5. Y. Yuan, T. J. Reece, P. Sharma et al., *Nature Mater.* **10**, 296 (2011).
6. Y. Yuan, P. Sharma, Zh. Xiao et al., *Energy & Environ. Sci.* **5**, 8558 (2012).
7. В. А. Бендерский, Е. И. Кац, *ЖЭТФ* **154**, 662 (2018) [*JETP* **127**, 566 (2018)].
8. V. A. Benderskii and E. I. Kats, *High Energy Chem.* **52**, 400 (2018).
9. K. J. Baeg, M. Binda, D. Natali et al., *Advanced Materials* **25**, 4267 (2013).
10. E. Manna, T. Xiao, J. Shinaret et al., *Electronics* **4**, 688 (2015).
11. G. Yu, K. Pakbaz, and A. J. Heeger, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 3422 (1994).
12. K. S. Nalwa, J. A. Carr, R. C. Mahadevapuram et al., *Energy & Environ. Sci.* **5**, 7042 (2012).
13. В. В. Лазарев, Л. М. Блинов, С. Г. Юдин, С. П. Палто, *Кристаллография* **60**, 314 (2015).
14. С. П. Палто, А. В. Алпатова, А. Р. Гейвандов и др., *Опт. и спектр.* **124**, 210 (2018).
15. L. M. Blinov, V. V. Lazarev, S. G. Yudin, and S. P. Palto, *Crystallogr. Rep.* **65**, 126 (2020).
16. А. Р. Гейвандов, С. П. Палто, С. Г. Юдин, Л. М. Блинов, *ЖЭТФ* **126**, 99 (2004) [*JETP* **99**, 83 (2004)].
17. A. M. Ganose and D. O. Scanlon, *Mat. Chem. C* **4**, 1467 (2016).

ОБОБЩЕННАЯ МОДЕЛЬ ИЗИНГА В МАГНИТНОМ ПОЛЕ

Е. С. Цуварев ^{a,b*}, Ф. А. Кассан-Оглы ^{b**}^a Уральский федеральный университет им. первого Президента России Б. Н. Ельцина
620000, Екатеринбург, Россия^b Институт физики металлов им. М. Н. Михеева Уральского отделения Российской академии наук
620108, Екатеринбург, РоссияПоступила в редакцию 11 февраля 2021 г.,
после переработки 22 апреля 2021 г.
Принята к публикации 23 апреля 2021 г.

Представлены результаты по обобщению модели Изинга на произвольное число трансляций линейной цепочки, находящейся во внешнем магнитном поле, с учетом различных взаимодействий между спинами. Выведено точное аналитическое выражение для наибольшего собственного значения трансфер-матрицы Крамерса–Ваннье с трансляцией на два периода цепочки во внешнем магнитном поле при учете ближайших и вторых соседей. Установлены точные выражения для нуль-температурных энтропий и намагниченностей при различных величинах и знаках обменных взаимодействий и магнитного поля. Многие найденные нуль-температурные энтропии и нуль-температурные намагниченности представлены через так называемые математические сечения, издавна известные в удивительном мире математики чисел (золотое сечение φ , серебряное сечение δ , сверхзолотое сечение ψ , пластическое число ρ и новые (безымянные)). Получен результат, при котором значения фрустрирующих энтропий и намагниченностей могут быть выражены через предел отношения определенных числовых последовательностей без привлечения формализма трансфер-матрицы Крамерса–Ваннье.

DOI: 10.31857/S0044451021080095

1. ВВЕДЕНИЕ

Первой работой по обобщению модели Изинга на несколько трансляций решетки была статья Сиози и Найя [1] (см. также [2, 3]). В этих работах получено точное аналитическое решение обобщенной квадратной решетки с трансляцией на два периода в горизонтальном (J_2, J_4) и вертикальном (J_1, J_3) направлениях (рис. 1) в отсутствие магнитного поля, но исследований каких-либо термодинамических свойств не проводилось.

Главным преимуществом данной решетки является то, что из структуры такого типа обобщения можно получать различные виды других решеток с помощью предельных переходов. Например, если положить $J_2 = J_4$ и $J_1 = J_3$, то получим решение, которое вывел Онзагер [4] для обычной (необобщенной) квадратной решетки в отсутствие магнит-

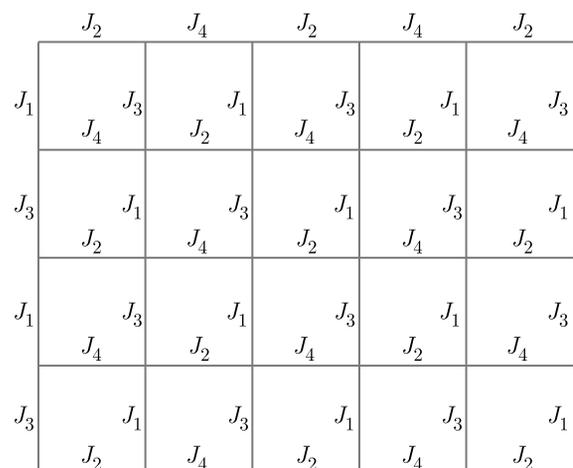


Рис. 1. Обобщение модели Изинга на квадратной решетке, предложенное Сиози, с обменными взаимодействиями J_1 и J_3 по вертикальному направлению и с обменными взаимодействиями J_2 и J_4 по горизонтальному направлению

ного поля. Чтобы осуществить переход к гексагональной решетке, необходимо устремить к нулю одно из четырех обменных взаимодействий, например,

* E-mail: eguny@mail.ru

** E-mail: felix.kassan-ogly@imp.uran.ru

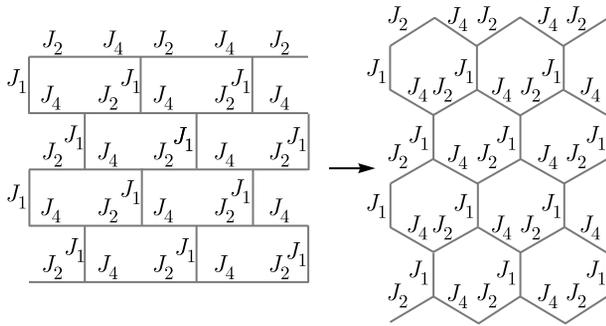


Рис. 2. При $J_3 = 0$ обобщенная квадратная решетка превращается в так называемую кирпичную кладку, которая топологически эквивалентна гексагональной решетке

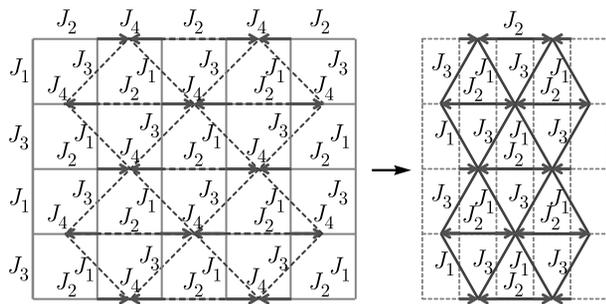


Рис. 3. Переход от обобщенной квадратной решетки к треугольной решетке при $J_2 \rightarrow \infty$

$J_3 \rightarrow 0$. Получаемая таким образом решетка типа «кирпичной кладки» (brick-wall lattice), показанная на рис. 2, топологически эквивалентна гексагональной решетке. В случае же перехода к треугольной решетке одно из четырех обменных взаимодействий обобщенной модели устремляется в бесконечность, например, $J_2 \rightarrow \infty$ (см. рис. 3).

Более универсальный вариант обобщения модели был предложен Утиямой в статье [5] на примере шахматной решетки, в которой все черные квадраты замещаются специальными вставками (рис. 4). Интересно, что в этом случае, помимо полученных решеток (квадратная необобщенная, треугольная, гексагональная) при $n = 0$, что означает всего один квадрат в качестве вставки со взаимодействиями J, J_1 и J_0 , можно получить также и решетку кагоме, положив $n = 1$ (в качестве вставки два квадрата со взаимодействиями J, J_0, J_1, J_2, J_3) и устремив J_1 к нулю (рис. 5).

Очевидно, что данные варианты обобщения, введенные на квадратной решетке Сиоззи, Найя и Утиямой, могут быть применены и к другим планарным решеткам с известными точными решениями (тре-

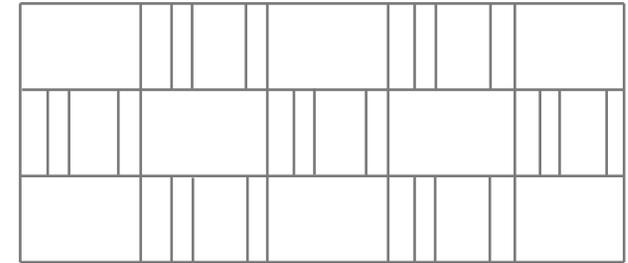
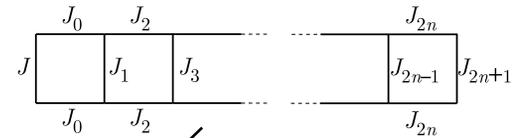


Рис. 4. Обобщение модели Изинга, предложенное Утиямой, на шахматной решетке

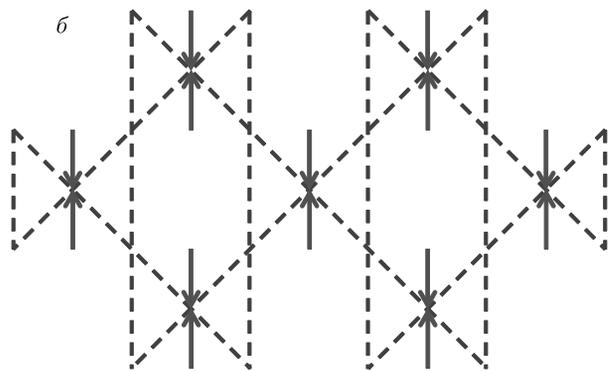
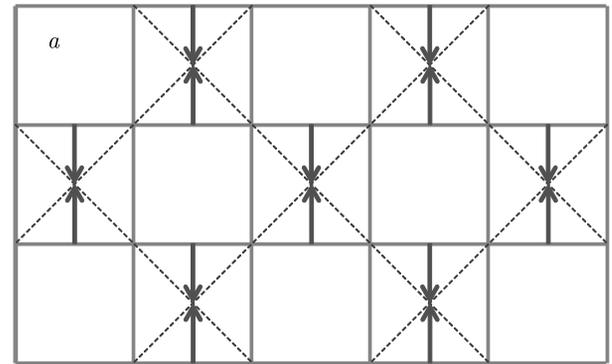


Рис. 5. Переход от решетки Утиямы к решетке кагоме: а) решетка Утиямы с одной вертикальной чертой при $J_1 \rightarrow 0$, б) решетка кагоме

угольная [6], гексагональная [7], кагоме [8]). В результате, всевозможными вариантами предельных переходов осуществляется получение множества самых разнообразных видов еще не изученных решеток.

В настоящей работе мы ставим цель обобщить модель Изинга на произвольное число трансляций линейной цепочки, поскольку именно на одномерной цепочке существует возможность получения точного аналитического решения в магнитном поле. Отметим, что некоторые предварительные обобщения модели Изинга на линейной цепочке сделаны в работах [9, 10].

2. ОБОБЩЕНИЕ МОДЕЛИ ИЗИНГА НА ПРОИЗВОЛЬНОЕ ЧИСЛО ТРАНСЛЯЦИЙ ЛИНЕЙНОЙ ЦЕПОЧКИ

Гамильтониан обобщенной модели Изинга с учетом взаимодействий между ближайшими и вторыми соседями с произвольным числом трансляций линейной цепочки, находящейся в магнитном поле, может быть записан в следующей форме:

$$\mathcal{H}_n(s) = -J_1 \sum_{i=1, n+1, 2n+1, \dots}^{N-n+1} s_i s_{i+1} - J'_1 \sum_{i=1, n+1, 2n+1, \dots}^{N-n+1} s_i s_{i+2} - J_2 \sum_{i=2, n+2, 2n+2, \dots}^{N-n+2} s_{i+1} s_{i+2} - J'_2 \sum_{i=2, n+2, 2n+2, \dots}^{N-n+2} s_{i+1} s_{i+3} - \dots - J_n \sum_{i=n, 2n, 3n, \dots}^N s_{i+n} s_{i+n+1} - J'_n \sum_{i=n, 2n, 3n, \dots}^N s_{i+n} s_{i+n+2} - H \sum_{i=1, 2, 3, \dots}^N s_i, \quad (1)$$

где J_1, J_2, \dots, J_n — параметры обменного взаимодействия между ближайшими соседями, J'_1, J'_2, \dots, J'_n — параметры обменного взаимодействия между вторыми соседями, H — внешнее магнитное поле, $s = \pm 1$ (см. рис. 6, на котором представлен частный случай модели для трансляций только на два периода решетки).

Следуя общему алгоритму вывода трансфер-матрицы Крамерса–Ваннье [11–13], можно получить трансфер-матрицы для одномерной цепочки с двумя, тремя, четырьмя и т. д. трансляциями в виде одной матрицы, например, для двух трансляций:

$$W_2 = \begin{pmatrix} e^{K_1+L_1+K_2+L_2+2h} & e^{K_1+L_1+K_2-L_2+2h} & e^{K_1-L_1-K_2+L_2+2h} & e^{K_1-L_1-K_2-L_2+2h} \\ e^{-K_1+L_1-K_2-L_2} & e^{-K_1+L_1-K_2+L_2} & e^{-K_1-L_1+K_2-L_2} & e^{-K_1-L_1+K_2+L_2} \\ e^{-K_1-L_1+K_2+L_2} & e^{-K_1-L_1+K_2-L_2} & e^{-K_1+L_1-K_2+L_2} & e^{-K_1+L_1-K_2-L_2} \\ e^{K_1-L_1-K_2-L_2-2h} & e^{K_1-L_1-K_2+L_2-2h} & e^{K_1+L_1+K_2-L_2-2h} & e^{K_1+L_1+K_2+L_2-2h} \end{pmatrix}, \quad (2)$$

где $K_1 = J_1/T$, $K_2 = J_2/T$, $L_1 = J'_1/T$, $L_2 = J'_2/T$, $H = h/T$.

С другой стороны, перемножив две матрицы V_1 и V_2 каждая из которых соответствует одной трансляции, получаем в точности исходную матрицу W_2 . Таким образом, показана эквивалентность W_2 и $V_1 \cdot V_2$.

Продолжая построение трансфер-матриц Крамерса–Ваннье для трех, четырех и т. д. трансляций в общем алгоритме вывода, будем получать все более и более громоздкие выражения, аналогичным образом превращаемые в гораздо более изящном виде в произведение простых матриц:

$$W_n = V_1 \cdot V_2 \cdot \dots \cdot V_n = \prod_{i=1}^n V_i = \prod_{i=1}^n \begin{pmatrix} e^{K_i+L_i+h} & e^{K_i-L_i+h} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{-K_i+L_i+h} & e^{-K_i-L_i+h} \\ e^{-K_i-L_i-h} & e^{-K_i+L_i-h} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & e^{K_i-L_i-h} & e^{K_i+L_i-h} \end{pmatrix}, \quad (3)$$

где V_1, V_2, \dots, V_n — трансфер-матрицы Крамерса–Ваннье, $K_i = J_i/T$, $L_i = J'_i/T$, $h = H/T$.

В результате трансфер-матрица Крамерса–Ванье W_n представляется как произведение трансфер-матриц V_i , относящихся к одной определенной

трансляции линейной цепочки.

Поскольку в гамильтониане (1) каждая сумма пробегает только по n узлам, а не по всем узлам решетки N , статсумма в термодинамическом пределе теперь примет вид

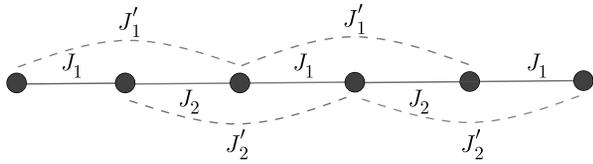


Рис. 6. Обобщенная модель Изинга с различными обменными взаимодействиями между ближайшими (J_1, J_2) и вторыми (J'_1, J'_2) соседями с трансляцией на два периода цепочки

$$Z_N = \lambda_{max}^{N/n}. \tag{4}$$

Свободная энергия, энтропия, теплоемкость, намагниченность и внутренняя энергия выражаются только через наибольшее собственное значение трансфер-матрицы Крамерса – Ваннье λ_{max}

$$F(H, T) = -\frac{T \ln \lambda_{max}}{n}, \tag{5}$$

$$S(H, T) = \frac{\ln \lambda_{max}}{n} + \frac{T}{n\lambda_{max}} \frac{\partial \lambda_{max}}{\partial T}, \tag{6}$$

$$C(H, T) = \frac{T}{n\lambda_{max}} \frac{\partial \lambda_{max}}{\partial T} + \frac{T}{n} \frac{\partial}{\partial T} \left(\frac{T}{\lambda_{max}} \frac{\partial \lambda_{max}}{\partial T} \right), \tag{7}$$

$$M(H, T) = \frac{T}{n\lambda_{max}} \frac{\partial \lambda_{max}}{\partial H}. \tag{8}$$

$$E(H, T) = \frac{T^2}{n} \frac{\partial \lambda_{max}}{\partial T}. \tag{9}$$

Получение точного аналитического решения для наибольшего собственного значения трансфер-матрицы Крамерса – Ваннье с гамильтонианом (1) весьма проблематично. Тем не менее, с конструированием несложной компьютерной программы выражения для максимальных собственных значений матрицы Крамерса – Ваннье с учетом конкретных взаимодействий (между третьими, четвертыми и следующими соседями) могут быть представлены численно, и расчеты термодинамических и магнитных величин проводятся также по формулам (5)–(9). В настоящей статье ввиду громоздкости общего решения мы его не приводим, а ограничимся рассмотрением обобщенной модели Изинга с учетом ближайших и вторых соседей в присутствии магнитного поля.

Тогда гамильтониан обобщенной модели Изинга с трансляцией трансфер-матрицы только на два узла линейной цепочки в магнитном поле представится в виде

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_2(s) = & -J_1 \sum_{i=1,3,5,\dots}^{N-1} s_i s_{i+1} - J'_1 \sum_{i=1,3,5,\dots}^{N-1} s_i s_{i+2} - \\ & - J_2 \sum_{i=2,4,6,\dots}^N s_{i+1} s_{i+2} - J'_2 \sum_{i=2,4,6,\dots}^N s_{i+1} s_{i+3} - \\ & - H \sum_{i=1,2,3,\dots}^N s_i, \tag{10} \end{aligned}$$

где J_1, J_2 – параметры обменного взаимодействия между ближайшими соседями, J'_1, J'_2 – параметры обменного взаимодействия между вторыми соседями, H – внешнее магнитное поле, $s = \pm 1$.

На рис. 6 проиллюстрирована цепочка, соответствующая обобщенной модели Изинга, описываемой гамильтонианом (10).

Определяем секулярное уравнение трансфер-матрицы W_2 в форме

$$\det(W_2 - \lambda E) = 0, \tag{11}$$

переписав его в виде

$$\lambda^4 + a\lambda^3 + b\lambda^2 + c\lambda + d = 0, \tag{12}$$

решаем его и находим наибольшее собственное значение, которое принимает вид

$$\begin{aligned} \lambda_{max} = & \frac{\sqrt{a^2 - 4b + 4y} - a}{4} + \\ & + \sqrt{\left(\frac{\sqrt{a^2 - 4b + 4y} - a}{4} \right)^2 - \frac{y}{2} - \frac{2c - ya}{2\sqrt{a^2 - 4b + 4y}}}, \tag{13} \end{aligned}$$

где

$$Q = \frac{p^3}{27} + \frac{q^2}{4}, \quad p = -\frac{b^2}{3} + ac - 4d,$$

$$q = -\frac{2b^3}{27} + \frac{bac}{3} + \frac{8bd}{3} - a^2d - c^2,$$

$$y = \sqrt[3]{\sqrt{Q} - \frac{q}{2}} + \sqrt[3]{-\sqrt{Q} - \frac{q}{2}} + \frac{b}{3},$$

$$\begin{aligned} a = & -2 \exp\left(\frac{J'_1 + J'_2}{T}\right) \left(\operatorname{ch}\left(\frac{2H}{T}\right) \exp\left(\frac{J_1 + J_2}{T}\right) + \right. \\ & \left. + \exp\left(\frac{-J_1 - J_2}{T}\right) \right), \end{aligned}$$

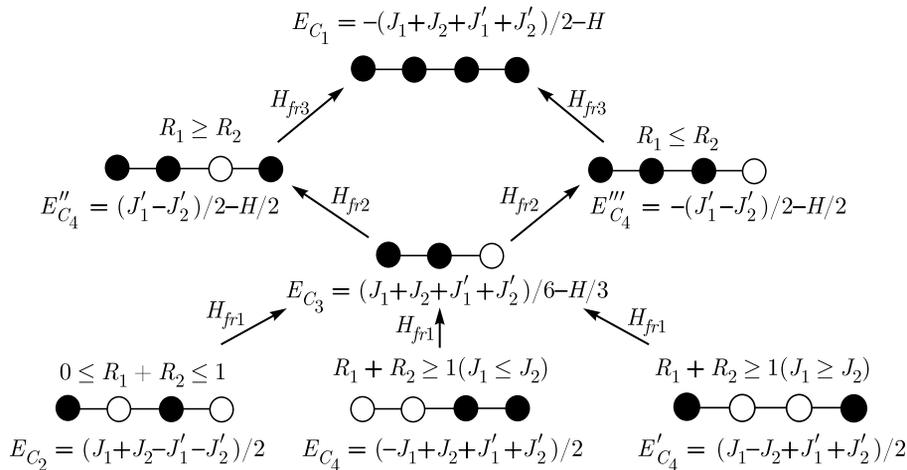


Рис. 7. Схема переходов в варианте конкурирующих взаимодействий при $J_1 < 0, J'_1 < 0, J_2 < 0, J'_2 < 0$. Темные кружки — спин направлен вверх, светлые — вниз

$$\begin{aligned}
 b &= 4 \exp\left(\frac{2J'_1 + 2J'_2}{T}\right) \operatorname{ch}\left(\frac{2H}{T}\right) - \\
 &- 4 \operatorname{ch}\left(\frac{2J'_1 - 2J'_2}{T}\right) \operatorname{ch}\left(\frac{2H}{T}\right) + 2 \exp\left(\frac{-2J_1}{T}\right) \times \\
 &\times \operatorname{sh}\left(\frac{2J'_1 + 2J'_2 - 2J_2}{T}\right) + 2 \exp\left(\frac{2J_1}{T}\right) \times \\
 &\times \operatorname{sh}\left(\frac{2J'_1 + 2J'_2 + 2J_2}{T}\right), \\
 c &= -8 \exp\left(\frac{J'_1 + J'_2}{T}\right) \left(\exp\left(\frac{J_1 + J_2}{T}\right) + \right. \\
 &+ \left. \exp\left(\frac{-J_1 - J_2}{T}\right) \operatorname{ch}\left(\frac{2H}{T}\right)\right) \operatorname{sh}\left(\frac{2J'_1}{T}\right) \operatorname{sh}\left(\frac{2J'_2}{T}\right), \\
 d &= 16 \operatorname{sh}^2\left(\frac{2J'_1}{T}\right) \operatorname{sh}^2\left(\frac{2J'_2}{T}\right).
 \end{aligned}$$

Поскольку вновь рассматривается перенос только на два периода трансляции цепочки, для нахождения термодинамических и магнитных величин системы можно воспользоваться формулами, представленными в статье [9].

3. ТЕРМОДИНАМИЧЕСКИЕ, МАГНИТНЫЕ И ФРУСТРИРУЮЩИЕ СВОЙСТВА ОБОБЩЕННОЙ МОДЕЛИ ИЗИНГА

Детальный анализ большого количества всевозможных вариантов величин и знаков обменных взаимодействий показал, что при учете как ближайших, так и вторых соседей в магнитном поле, система обладает семью магнитными конфигурациями в основном состоянии: антиферромагнитная структура

$$C_2 = \left\{ \begin{array}{cccc} \dots & \downarrow & \uparrow & \downarrow & \uparrow & \dots \\ \dots & \uparrow & \downarrow & \uparrow & \downarrow & \dots \end{array} \right\}$$

с внутренней энергией $E_{C_2} = (J_1 + J_2)/2 - (J'_1 + J'_2)/2$, ферромагнитное упорядочение

$$C_1 = \{ \dots \uparrow \uparrow \uparrow \uparrow \dots \}$$

с внутренней энергией $E_{C_1} = -(J_1 + J_2)/2 - (J'_1 + J'_2)/2 - H$, четыре фазы C_4, C'_4, C''_4 и C'''_4 с учетверением периода трансляции решетки

$$C_4 = \left\{ \begin{array}{cccc} \dots & \downarrow & \downarrow & \uparrow & \uparrow & \dots \\ \dots & \uparrow & \uparrow & \downarrow & \downarrow & \dots \end{array} \right\}, \quad C'_4 = \left\{ \begin{array}{cccc} \dots & \uparrow & \downarrow & \downarrow & \uparrow & \dots \\ \dots & \downarrow & \uparrow & \uparrow & \downarrow & \dots \end{array} \right\},$$

$$C''_4 = \{ \dots \uparrow \uparrow \downarrow \uparrow \dots \}, \quad C'''_4 = \{ \dots \uparrow \uparrow \uparrow \downarrow \dots \}$$

с внутренними энергиями соответственно $E_{C_4} = -(J_1 - J_2)/2 + (J'_1 + J'_2)/2, E_{C'_4} = (J_1 - J_2)/2 + (J'_1 + J'_2)/2, E_{C''_4} = (J'_1 - J'_2)/2 - H/2, E_{C'''_4} = -(J'_1 - J'_2)/2 - H/2$ и конфигурация C_3 с утроением периода трансляции

$$C_3 = \{ \dots \uparrow \uparrow \downarrow \dots \}$$

с внутренней энергией $E_{C_3} = (J_1 + J_2 + J'_1 + J'_2)/6 - H/3$.

Рассматриваемая обобщенная модель Изинга в магнитном поле обладает восемью вариантами конкурирующих взаимодействий между ближайшими и вторыми соседями. Обсудим каждый из них отдельно. Но для начала введем коэффициенты взаимодействий: $R_1 = |J'_1/J_1|$ и $R_2 = |J'_2/J_2|$. Коэффициент R_1 отвечает за отношение взаимодействий на нечетных узлах решетки, а R_2 на четных узлах.

1. Антиферромагнитные взаимодействия между ближайшими и вторыми соседями ($J_1 < 0, J'_1 < 0, J_2 < 0, J'_2 < 0$)

Сравнивая энергии конфигураций (рис. 7), установленных выше, определим фрустрационные поля, в которых происходят переходы между соответствующими упорядочениями:

$$H_{fr1} = \begin{cases} -J_1 + 2J'_1 - J_2 + 2J'_2, & 0 \leq R_1 + R_2 \leq 1, \\ 2J_1 - J'_1 - J_2 - J'_2, & R_1 + R_2 \geq 1 \text{ и } J_1 \leq J_2, \\ -J_1 - J'_1 + 2J_2 - J'_2, & R_1 + R_2 \geq 1 \text{ и } J_1 \geq J_2; \end{cases}$$

$$H_{fr2} = \begin{cases} -J_1 + 2J'_1 - J_2 - 4J'_2, & R_1 \geq R_2, \\ -J_1 - 4J'_1 - J_2 + 2J'_2, & R_1 \leq R_2; \end{cases}$$

$$H_{fr3} = \begin{cases} -J_1 - 2J'_1 - J_2, & R_1 \geq R_2, \\ -J_1 - J_2 - 2J'_2, & R_1 \leq R_2. \end{cases}$$

Первое фрустрирующее поле при $R_1 + R_2 < 1$. Данное фрустрирующее поле получается при рассмотрении перехода между антиферромагнитной конфигурацией C_2 и конфигурацией C_3 с утроением периода трансляций решетки [14]. Значение нуль-температурной энтропии находится как натуральный логарифм единственного вещественного корня уравнения $x^3 - x - 1 = 0$, известного как пластическое число

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \rho = 0.2812 \dots, \quad (14)$$

где $\rho = \sqrt[3]{(9 + \sqrt{69})/18} + \sqrt[3]{(9 - \sqrt{69})/18}$ — пластическое число.

$$\xi = \left\{ \sqrt[3]{(\sqrt{849} + 9)/1152} - \sqrt[3]{(\sqrt{849} - 9)/1152} \right\}^{1/2} + \left\{ 1 / \left(4 \sqrt[3]{(\sqrt{849} + 9)/1152} - \sqrt[3]{(\sqrt{849} - 9)/1152} \right) - \sqrt[3]{(\sqrt{849} + 9)/1152} + \sqrt[3]{(\sqrt{849} - 9)/1152} \right\}^{1/2}.$$

Это математическое сечение пока безымянное.

Первое фрустрирующее поле при $R_1 + R_2 = 1$. При таком условии система вырождается в обычную (необобщенную) модель Изинга с взаимодействиями между ближайшими и вторыми соседями [14]. Фрустрирующее поле равно нулю, а энтропия равна логарифму золотого сечения

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \varphi = 0.4812 \dots, \quad (19)$$

где $\varphi = (1 + \sqrt{5})/2$ — золотое сечение.

Значение нуль-температурной намагниченности, в свою очередь, может быть выражено через пластическое число

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{1}{3\rho^3 - \rho} = 0.1770 \dots \quad (15)$$

Первое фрустрирующее поле при $R_1 + R_2 > 1$ и $J_1 < J_2$ или при $R_1 + R_2 > 1$ и $J_1 > J_2$. В этом фрустрирующем поле возникает переход между фазами учетверения периода трансляций решетки и между фазой утроения периода трансляций, а именно, между фазами C_4 и C_3 либо между фазами C'_4 и C_3 , в зависимости от величин J_1 и J_2 . Значение энтропии при стремлении температуры к нулю равно натуральному логарифму квадратного корня из пластического числа

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \sqrt{\rho} = 0.1406 \dots \quad (16)$$

Соответствующая намагниченность равна выражению (15).

Первое фрустрирующее поле при $R_1 + R_2 > 1$ и $J_1 = J_2$. В случае, когда $J_1 = J_2$, энергии конфигураций с учетверением периода трансляций C_4 и C'_4 станут равны, тем самым, фрустрирующие поля также совпадут [12]. Нуль-температурная энтропия находится как натуральный логарифм наибольшего вещественного корня уравнения $x^4 - x - 1 = 0$

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \xi = 0.1995 \dots, \quad (17)$$

а нуль-температурная намагниченность

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{1}{\xi + 4\xi^3 - \xi^4} = 0.1593 \dots, \quad (18)$$

где

Второе фрустрирующее поле при $R_1 > R_2$ или $R_1 < R_2$. Если $R_1 > R_2$, то система претерпевает переход в конфигурацию учетверения C''_4 из фазы утроения периода трансляций C_3 , а если $R_1 < R_2$, тогда система перейдет в конфигурацию C'''_4 из фазы C_3 . Тем не менее, значения нуль-температурных энтропий для этих двух переходов будут одинаковы (16), как и намагниченности

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{\rho^2}{3\rho^2 - 1} = 0.4115 \dots, \quad (20)$$

где

$$\rho = \sqrt[3]{(9 + \sqrt{69})/18} + \sqrt[3]{(9 - \sqrt{69})/18}$$

— пластическое число.

Второе фрустрирующее поле при $R_1 = R_2$. При равенстве коэффициентов взаимодействий R_1 и R_2 получаем обычную (необобщенную) модель Изинга с взаимодействиями между первыми и вторыми соседями в магнитном поле. Происходит переход из конфигурации с утроением периода трансляций C_3 сразу в ферромагнитную конфигурацию C_1 [14]. Нуль-температурная энтропия в данном фрустрирующем поле выражается как натуральный логарифм единственного вещественного корня уравнения $x^3 - x^2 - 1 = 0$, известного как сверхзолотое сечение

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \psi = 0.3822 \dots, \quad (21)$$

а нуль-температурная намагниченность равна

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{\psi^3}{\psi^2 + 3} = 0.6115 \dots, \quad (22)$$

где

$$\psi = \left(1 + \sqrt[3]{(29 + 3\sqrt{93})/2} + \sqrt[3]{(29 - 3\sqrt{93})/2}\right)/3$$

— сверхзолотое сечение.

Третье фрустрирующее поле при $R_1 < R_2$ или $R_1 > R_2$. В данном фрустрирующем поле происходит переход из конфигураций с учетверением периода трансляций C_4'' (или C_4''') в ферромагнитное состояние C_1 . Значение нуль-температурной энтропии равно натуральному логарифму квадратного корня из золотого сечения

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \sqrt{\varphi} = 0.2406 \dots, \quad (23)$$

а нуль-температурная намагниченность

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{\varphi}{2\varphi - 1} = 0.7236 \dots, \quad (24)$$

где $\varphi = (1 + \sqrt{5})/2$ — золотое сечение.

Однако, если положить $|R_1 - R_2| = 1$, первое и второе фрустрирующие поля совпадут ($H_{fr1} = H_{fr2}$), при этом произойдет переход из конфигураций с нулевой намагниченностью (C_2 , C_4 или C_4') непосредственно в фазу с учетверением периода трансляций решетки (C_4'' или C_4'''), энтропия в этом случае находится как натуральный логарифм квадратного корня наибольшего решения уравнения $x^3 - x^2 - 2x + 1 = 0$

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \sqrt{\nu} = 0.2944 \dots, \quad (25)$$

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{1}{3\nu^2 - 2\nu - 2} = 0.2417 \dots, \quad (26)$$

где

$$\nu = \left(1 + \sqrt[3]{98/(3\sqrt{3}i - 1)} + \sqrt[3]{(21\sqrt{3}i - 7)/2}\right)/3.$$

Это математическое сечение пока безымянное.

Перечисленные фрустрационные значения энтропий и намагниченностей отражены на рис. 8.

2. Антиферро-антиферромагнитное взаимодействие между ближайшими соседями, антиферро-ферромагнитное взаимодействие между вторыми соседями ($J_1 < 0$, $J_1' < 0$, $J_2 < 0$, $J_2' > 0$)

$$H_{fr1} = -J_1 + 2J_1' - J_2,$$

$$H_{fr2} = -J_1 - 2J_1' - J_2.$$

3. Антиферро-антиферромагнитное взаимодействие между ближайшими соседями, ферро-антиферромагнитное взаимодействие между вторыми соседями ($J_1 < 0$, $J_1' > 0$, $J_2 < 0$, $J_2' < 0$)

$$H_{fr1} = -J_1 - J_2 + 2J_2',$$

$$H_{fr2} = -J_1 - J_2 - 2J_2'.$$

Варианты конкурирующих взаимодействий 2 и 3 схожи. Достаточно привести только одну схему переходов, например, $J_1 < 0$, $J_1' > 0$, $J_2 < 0$, $J_2' < 0$ (рис. 9). Отличительной чертой этих двух вариантов является только разница в промежуточном состоянии (C_4'' или C_4''') между антиферромагнитной (C_2) и ферромагнитной (C_1) конфигурациями.

Первое фрустрирующее поле. В данном фрустрирующем поле происходит переход из антиферромагнитного упорядочения C_2 в конфигурацию с учетверением периода трансляции C_4''' . Энтропия равна натуральному логарифму корня из золотого сечения (23) с соответствующим значением намагниченности

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{1}{2\varphi^2 - \varphi} = 0.2763 \dots \quad (27)$$

Второе фрустрирующее поле. Энтропия соответствует выражению (23), а намагниченность

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{1}{2\varphi - 1} = 0.4472 \dots, \quad (28)$$

где $\varphi = (1 + \sqrt{5})/2$ — золотое сечение.

При $R_1 = R_2 = 0$ приходим к случаю необобщенной модели Изинга с взаимодействием ближайших соседей в магнитном поле [13, 14] с хорошо известными значениями для нуль-температурных энтропий (19) и намагниченностей (28).

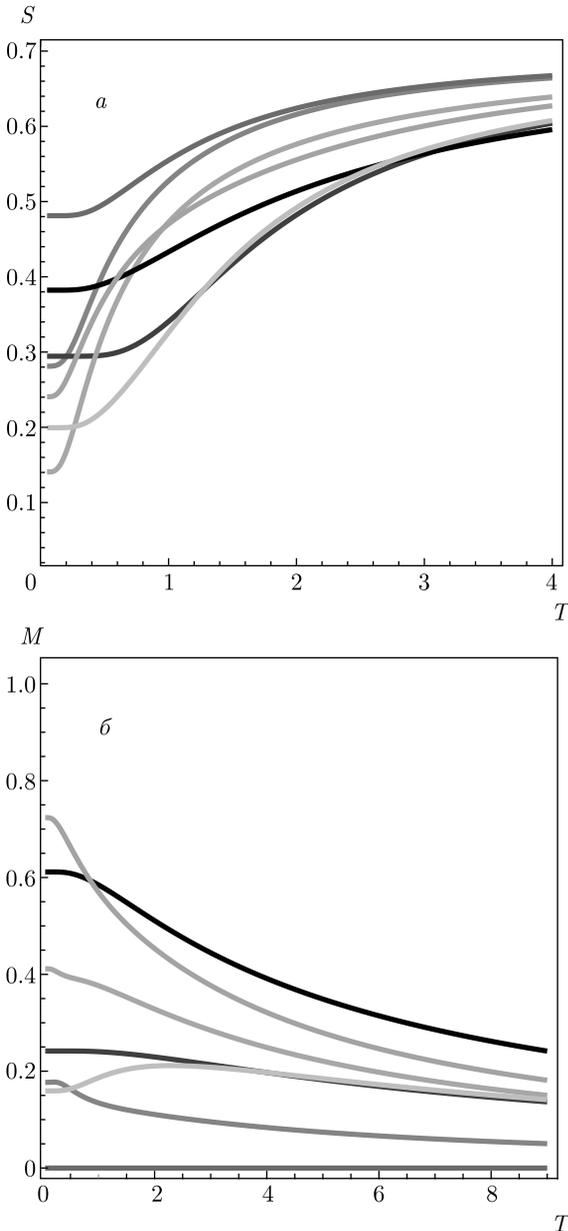


Рис. 8. Температурные зависимости энтропий (а) и намагниченностей (б). Зеленые кривые — $J_1 = -1, J'_1 = -0.5, J_2 = -1, J'_2 = -0.2, H = 1.8$, красные — $J_1 = -1, J'_1 = -0.5, J_2 = -1, J'_2 = -0.2, H = 0.6$, синие — $J_1 = -1, J'_1 = -2, J_2 = -1, J'_2 = -1, H = 2$, черные — $J_1 = -1, J'_1 = -0.5, J_2 = -1, J'_2 = -0.5, H = 3$, фиолетовые — $J_1 = -1, J'_1 = -0.5, J_2 = -1, J'_2 = -0.5, H = 0$, оранжевые — $J_1 = -0.2, J'_1 = -0.4, J_2 = -1, J'_2 = -0.2, H = 2$, бирюзовые — $J_1 = -1, J'_1 = -1.5, J_2 = -1, J'_2 = -1.6, H = 2.1$

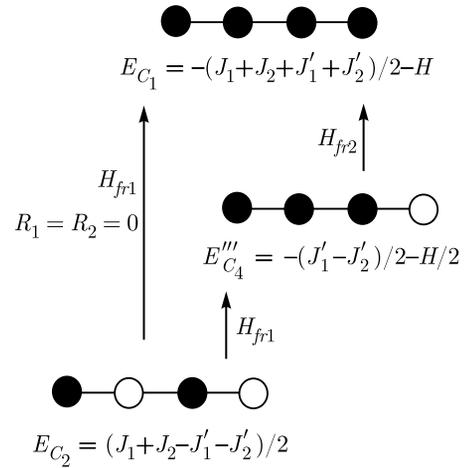


Рис. 9. Вариант конкурирующих взаимодействий при $J_1 < 0, J'_1 > 0, J_2 < 0, J'_2 < 0$. Темные кружки — спин направлен вверх, светлые — вниз

4. Антиферро-ферромагнитное взаимодействие между ближайшими соседями, ферро-антиферромагнитное взаимодействие между вторыми соседями ($J_1 < 0, J'_1 > 0, J_2 > 0, J'_2 < 0$)

$$H_{fr1} = \begin{cases} -J_1 - J'_1 - J'_2, & 0 \leq R_1 + R_2 \leq 1, \\ -J_1 - 2J'_1 + J_2, & R_1 + R_2 \geq 1; \end{cases}$$

$$H_{fr2} = -J_1 - J_2 - 2J'_2.$$

При $R_1 \geq (|J_1| + |J_2|)/2, (|J_1| \geq 1, |J_2| \geq 1)$ и любом R_2 : основное состояние C_4'' .

5. Антиферро-ферромагнитное взаимодействие между ближайшими и вторыми соседями ($J_1 < 0, J'_1 < 0, J_2 > 0, J'_2 > 0$)

$$H_{fr1} = \begin{cases} -J_1 - J'_1 - J'_2, & 0 \leq R_1 + R_2 \leq 1, \\ -J_1 - 2J'_1 + J_2, & R_1 + R_2 \geq 1; \end{cases}$$

$$H_{fr2} = -J_1 - 2J'_1 - J_2.$$

При $R_2 \geq (|J_1| + |J_2|)/2, (|J_1| \geq 1, |J_2| \geq 1)$ и любом R_1 : основное состояние C_4' .

6. Ферро-антиферромагнитное взаимодействие между ближайшими и вторыми соседями ($J_1 > 0, J'_1 > 0, J_2 < 0, J'_2 < 0$)

$$H_{fr1} = \begin{cases} -J'_1 - J_2 - J'_2, & 0 \leq R_1 + R_2 \leq 1, \\ J_1 - 2J'_1 - J_2, & R_1 + R_2 \geq 1; \end{cases}$$

$$H_{fr2} = -J_1 - J_2 - 2J'_2.$$

При $R_1 \geq (|J_1| + |J_2|)/2, (|J_1| \geq 1, |J_2| \geq 1)$ и любом R_2 : основное состояние C_4''' .

7. Ферро-антиферромагнитное взаимодействие между ближайшими соседями, антиферро-ферро-

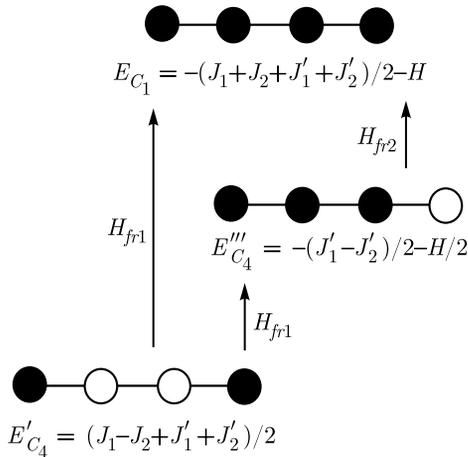


Рис. 10. Возможные варианты переходов между конфигурациями в магнитном поле при $J_1 < 0, J'_1 > 0, J_2 > 0, J'_2 < 0$. Темные кружки — спин направлен вверх, светлые — вниз

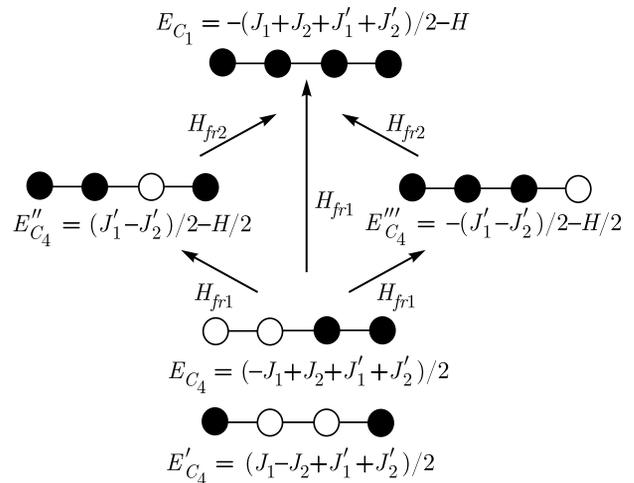


Рис. 11. Конкурирующие взаимодействия $J_1 > 0, J'_1 < 0, J_2 > 0, J'_2 < 0$ при условии $J_1 = J_2$. Темные кружки — спин направлен вверх, светлые — вниз

магнитное взаимодействие между вторыми соседями ($J_1 > 0, J'_1 < 0, J_2 < 0, J'_2 > 0$)

$$H_{fr1} = \begin{cases} -J'_1 - J_2 - J'_2, & 0 \leq R_1 + R_2 \leq 1, \\ J_1 - J_2 - 2J'_2, & R_1 + R_2 \geq 1; \end{cases}$$

$$H_{fr2} = -J_1 - 2J'_1 - J_2.$$

При $R_2 \geq (|J_1| + |J_2|)/2, (|J_1| \geq 1, |J_2| \geq 1)$ и любом R_1 : основное состояние C_4'' .

Характерной чертой четырех рассматриваемых вариантов является то, что один из коэффициентов взаимодействия может быть сколь угодно большим по модулю. Главное, чтобы знак этого взаимодействия сохранялся. Кроме того, если второй коэффициент достигает величины $(|J_1| + |J_2|)/2$ при $(|J_1| \geq 1, |J_2| \geq 1)$, то фаза с учетверением периода трансляций (C_4'' или C_4''') становится начальным состоянием системы. На рис. 10 приведена схема переходов при $J_1 < 0, J'_1 > 0, J_2 > 0, J'_2 < 0$.

Первое фрустрирующее поле при $0 \leq R_1 + R_2 \leq 1$. Энтропия находится из выражения (23), а намагниченность из выражения (28).

Первое фрустрирующее поле при $R_1 + R_2 \geq 1$. Данное фрустрирующее поле описывает переход между фазами с учетверением периода трансляций, конкретнее, переход осуществляется из фазы C_4'' в фазу C_4''' . Нуль-температурная энтропия равна натуральному логарифму корня четвертой степени из двух

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \sqrt[4]{2} = 0.1733 \dots, \quad (29)$$

нуль-температурная намагниченность равна

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{1}{4}. \quad (30)$$

Второе фрустрирующее поле. Энтропия равна выражению (23), намагниченность выражению (24).

При $R_1 + R_2 = 1$ получается переход из фазы с учетверением периода трансляций C_4''' в ферромагнитную фазу C_1 , при этом энтропия равна натуральному логарифму квадратного корня из двух

$$S_{fr} = \ln \sqrt{2}, \quad (31)$$

а соответствующая намагниченность будет равна

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{1}{2}. \quad (32)$$

Такое значение намагниченности символизирует то, что вдоль поля направлена половина всех спинов в цепочке.

8. Ферромагнитное взаимодействие между ближайшими соседями, антиферромагнитное взаимодействие между вторыми соседями ($J_1 > 0, J'_1 < 0, J_2 > 0, J'_2 < 0$)

Данный вариант является обобщением конкурирующих взаимодействий между ближайшими соседями в обычной модели Изинга [16]. Положим, что $J_1 = J_2$, таким образом, энергии конфигураций с учетверениями периода трансляций с нулевой намагниченностью совпадут. При увеличении магнитного поля будут происходить переходы в состояния с намагниченностью $1/2$, более того, при некоторых значениях обменных взаимодействий возможен переход сразу в ферромагнитную конфигурацию (рис. 11).

$$H_{fr1} = \begin{cases} J_1 - J_2 - 2J'_2, & R_1 - R_2 \geq 1, \\ -J'_1 - J_2 - J'_2, & -1 \leq R_1 - R_2 \leq 1, \\ J_1 - 2J'_1 - J_2, & R_1 - R_2 \leq -1; \end{cases}$$

$$H_{fr2} = \begin{cases} -J_1 - 2J'_1 - J_2, & R_1 - R_2 \geq 1, \\ -J_1 - J_2 - 2J'_2, & R_1 - R_2 \leq -1. \end{cases}$$

Первое фрустрирующее поле при $R_1 - R_2 \geq 1$ (или $R_1 - R_2 \leq -1$). Происходит переход из фазы учетверения периода трансляции C_4 (или C'_4) в другую фазу учетверения C''_4 (или C'''_4) с энтропией (23) и намагниченностью

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{1}{4\varphi - 2} = 0.2236 \dots, \quad (33) \quad \text{где}$$

$$\mu = 1/4 + \left\{ 1 - 16 \left(\sqrt[3]{(\sqrt{849} + 9)/1152} - \sqrt[3]{(\sqrt{849} - 9)/1152} \right) \right\}^{1/2} / 4 +$$

$$+ \left\{ \left(3 + 2 / \left(1 - 16 \left(\sqrt[3]{(\sqrt{849} + 9)/1152} - \sqrt[3]{(\sqrt{849} - 9)/1152} \right) \right)^{1/2} \right) / 16 - \right.$$

$$\left. - \left(1 - 16 \left(\sqrt[3]{(\sqrt{849} + 9)/1152} - \sqrt[3]{(\sqrt{849} - 9)/1152} \right) / 16 \right) \right\}^{1/2}.$$

Это математическое сечение пока безымянное.

Первое фрустрирующее поле при $R_1 - R_2 = 1$ или $R_1 - R_2 = -1$. Происходит переход из фаз с учетверением периода трансляции C_4 или C'_4 в ферромагнитное упорядочение C_1 . Энтропия принимает значение натурального логарифма квадратного корня наибольшего решения уравнения $x^3 - 2x^2 - x + 1 = 0$:

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \sqrt{\varkappa} = 0.4048 \dots, \quad (36)$$

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{\varkappa^2}{2\varkappa^2 + 2\varkappa - 3} = 0.43556 \dots, \quad (37)$$

где

$$\varkappa = \left(2 + \sqrt[3]{98/(3\sqrt{3}i + 1)} + \sqrt[3]{(21\sqrt{3}i + 7)/2} \right) / 3.$$

Это математическое сечение пока безымянное.

Второе фрустрирующее поле. Энтропия определяется из выражения (23), а соответствующая намагниченность будет равна выражению (24).

Рисунок 12 демонстрирует обнаруженные фрустрационные значения энтропий и намагниченностей в данном варианте конкурирующих взаимодействий.

где $\varphi = (1 + \sqrt{5})/2$ — золотое сечение.

Первое фрустрирующее поле при $-1 \leq R_1 - R_2 \leq 1$. В этом случае наблюдается переход из фазы учетверения периода трансляции C_4 в ферромагнитную конфигурацию C_1 [14] с энтропией, равной натуральному логарифму наибольшего вещественного корня уравнения $x^4 - x^3 - 1 = 0$

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \mu = 0.3223 \dots, \quad (34)$$

$$M_{T \rightarrow 0} = \frac{\mu^4}{\mu^3 + 4\mu + 1} = 0.3967 \dots, \quad (35)$$

3.1. Частные случаи обобщенной модели Изинга в присутствии магнитного поля

Ранее мы говорили, что главным преимуществом обобщенной квадратной решетки с трансляциями в горизонтальном и вертикальном направлениях является возможность получения известных видов решеток (таких как гексагональная, треугольная и квадратная решетки) через предельные переходы. Таким образом, обобщением на произвольное число трансляций можно получить такую решетку, которая будет включать, помимо известных нам решеток, совершенно новые типы структур в двумерном пространстве. Очевидно, что все те же манипуляции справедливы и в одномерии.

Ниже приведены некоторые частные случаи обобщенной модели Изинга с учетом различных обменных взаимодействий между ближайшими и вторыми соседями, находящихся в магнитном поле.

1. Единожды декорированная цепочка

Полагая нулю одно из взаимодействий между вторыми соседями (например, $J'_2 = 0$), представим обобщенную цепочку в виде, показанном на рис. 13. При $J_1 = J_2$ получим простейший случай декорированной цепочки, а именно, единожды декорированную цепочку [10] с двумя фрустрирующими полями:

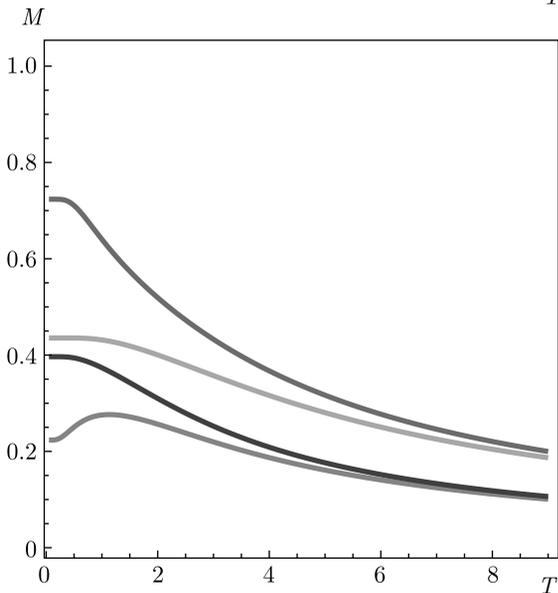
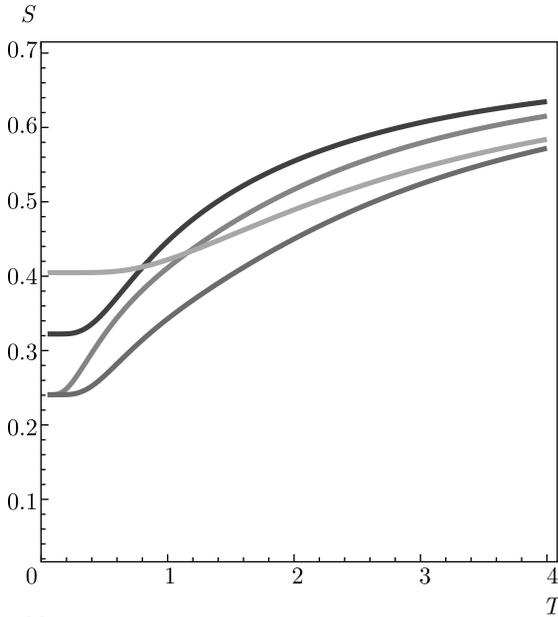


Рис. 12. Температурные зависимости энтропий (а) и намагниченностей (б). Зеленые кривые — $J_1 = 1, J'_1 = -2, J_2 = 1, J'_2 = -1, H = 2$, красные — $J_1 = 1, J'_1 = -2, J_2 = -0.5, J'_2 = -0.5, H = 1$, синие — $J_1 = 1, J'_1 = -1, J_2 = 1, J'_2 = -1, H = 1$, фиолетовые — $J_1 = 1, J'_1 = -2, J_2 = 1, J'_2 = -0.5, H = 2$

$$H_{fr1} = \begin{cases} -J_1 - J_2, & J'_1 = 0, \\ -J_1 + 2J'_1 - J_2, & 0 \geq J'_1 \geq J_2; \end{cases}$$

$$H_{fr2} = -J_1 - 2J'_1 - J_2.$$

Первое фрустрирующее поле при $J'_1 = 0$. Энтропия (19) с намагниченностью (24).

Первое фрустрирующее поле при $0 \geq J'_1 \geq J_2$. Энтропия равна натуральному логарифму корня из

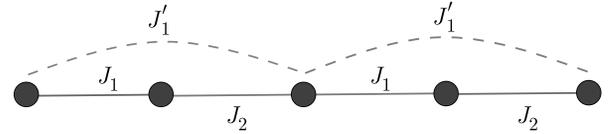


Рис. 13. Цепочка без взаимодействия J'_2 . В случае $J_1 = J_2$ реализуется случай единожды декорированной цепочки

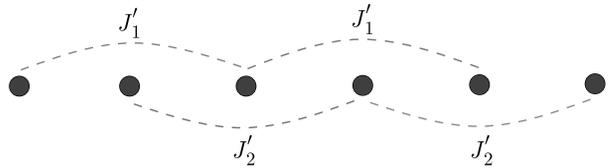


Рис. 14. Узлы в данной цепочке связаны взаимодействиями только между вторыми соседями, образуя две независимые друг от друга цепочки

двух (31) с намагниченностью (30).

Первое фрустрирующее поле при $J'_1 = J_2$ и $J'_2 = 0$ ($J'_2 = J_2$ и $J'_1 = 0$ аналогично). Приравняв взаимодействие между ближайшими соседями к взаимодействию между вторыми соседями, получаем ситуацию при $H_{fr} = 0$ и с нуль-температурной энтропией равной натуральному логарифму корня из трех:

$$S_{fr} = \ln \sqrt{3}. \tag{38}$$

Второе фрустрирующее поле. Энтропия (23) с намагниченностью (24).

2. Набор двух независимых подрешеток

Довольно любопытный случай получается, если убрать из рассмотрения взаимодействия между ближайшими соседями. Тогда цепочка примет вид, показанный на рис. 14.

$$H_{fr1} = \begin{cases} -2J'_1, & J'_1 \leq J'_2, \\ -2J'_2, & J'_1 \geq J'_2; \end{cases}$$

$$H_{fr2} = \begin{cases} -2J'_2, & J'_1 \leq J'_2, \\ -2J'_1, & J'_1 \geq J'_2. \end{cases}$$

Первое фрустрирующее поле при $J'_1 \leq J'_2$ или при $J'_1 \geq J'_2$. Энтропия (23) с намагниченностью (33).

Первое фрустрирующее поле при $J'_1 = J'_2$. Любопытно, что при равенстве взаимодействий мож-

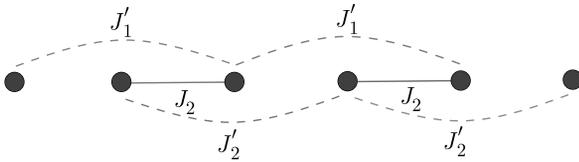


Рис. 15. Цепочка лестничного типа

но прийти к результатам, полученным для обычной (необобщенной) решетки с ближайшими соседями с энтропией (19) и намагниченностью (24).

Второе фрустрирующее поле. Энтропия (23) с намагниченностью (24).

3. Цепочка лестничного типа

И, наконец, рассмотрим лестничную цепочку (рис. 15).

$$H_{fr1} = \begin{cases} -J_2 - 2J_2', & R_2 \leq J_1', \\ -2J_1' - J_2, & R_2 \geq J_1'; \end{cases}$$

$$H_{fr2} = \begin{cases} -J_2 - 2J_1', & R_2 \leq J_1', \\ -2J_2' - J_2, & R_2 \geq J_1'. \end{cases}$$

Первое фрустрирующее поле при $R_2 \leq J_1'$ или при $R_2 \geq J_1'$. Энтропия (29) с намагниченностью (30).

Первое фрустрирующее поле при $J_1 = 0$ и $R_2 = J_1'$ ($J_2 = 0$ и $R_1 = J_2'$ аналогично). Энтропия равна логарифму квадратного корня наибольшего решения уравнения $x^2 - x - 1 = 0$, известного как серебряное сечение

$$S_{T \rightarrow 0} = \ln \sqrt{\delta} = 0.4407 \dots, \tag{39}$$

где $\delta = 1 + \sqrt{5}$ — серебряное сечение, а намагниченность равна $1/2$.

Второе фрустрирующее поле. Энтропия (23) с намагниченностью (24).

При исследовании фрустрационных свойств рассматриваемой в статье модели обнаружилась любопытная особенность, а именно, при некоторых наборах обменных взаимодействий и некоторых (иногда совпадающих) фрустрационных полях нуль-температурные энтропии и намагниченности могут совпадать. В частности, это имеет место при $J_1 = 1.0, J_1' = -2.0, J_2 = 1.0, J_2' = -0.5, H = 2$, а также при $J_1 = -0.2, J_1' = -0.4, J_2 = -1.0, J_2' = -0.2, H = 2$.

В этом случае совпадают три наблюдаемых: нуль-температурная энтропия, равная логарифму квадратного корня из золотого сечения (23);

нуль-температурная намагниченность, равная золотому сечению, деленному на два золотого сечения минус единица (24), а также фрустрационное поле, равное двум.

Таким образом, создается впечатление, что поведение системы (по крайней мере, в основном состоянии) одинаково при обменных взаимодействиях, разных как по величине, так и по знаку. Ложность этого впечатления доказывается при дополнительном исследовании других наблюдаемых, а именно теплоемкости и особенно внутренней энергии, существенно разной даже в основном состоянии (см. рис. 16). Отсюда следует важный вывод о том, что получение истинного поведения системы может быть достигнуто только при комплексном исследовании, а исследование ограниченного числа наблюдаемых приводит к ошибочным результатам.

4. МАТЕМАТИЧЕСКИЕ СЕЧЕНИЯ И ПОСЛЕДОВАТЕЛЬНОСТИ В МОДЕЛИ ИЗИНГА

Как уже отмечено, некоторые значения нуль-температурных энтропий и нуль-температурных намагниченностей выражаются через сечения, хорошо известные в математике чисел, а именно, через золотое сечение φ , серебряное сечение δ , сверхзолотое сечение ψ , пластическое число ρ и другие. Чтобы объяснить такое удивительное появление весьма большого количества математических констант при рассмотрении модели Изинга, стоит обратиться к важной теореме Фробениуса–Перрона. Эта теорема утверждает, что квадратная матрица со строго положительными вещественными элементами имеет одно наибольшее собственное значение, которое обязательно является вещественным и строго положительным. Кроме того, известно, что это наибольшее собственное значение является так называемым числом Перрона. Это означает, что искомое собственное значение уравнения является вещественным и больше единицы, при этом все сопряженные корни уравнения меньше искомого собственного значения по абсолютной величине.

Поскольку аргумент натурального логарифма в выражениях для нуль-температурной энтропии является статистическим весом системы Ω , эта величина может принимать значение только в промежутке $1 \leq \Omega \leq 2$. Откуда следует, что $S = \ln \Omega = \ln 1 = 0$ (при $T \rightarrow 0$), что в результате соответствует ситу-

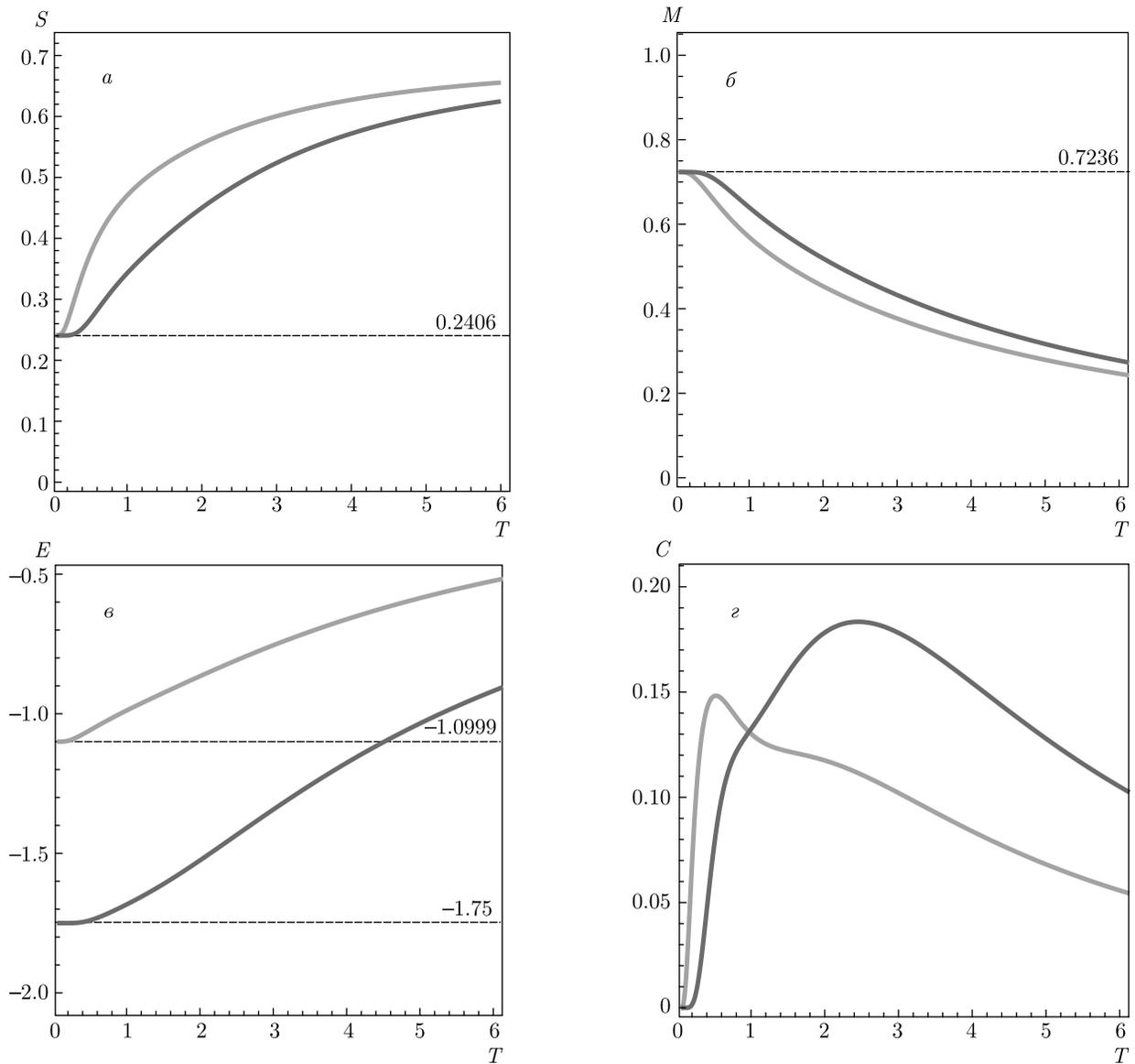


Рис. 16. Температурные зависимости энтропий (а), намагниченностей (б), внутренних энергий (в) и теплоемкостей (г). Фиолетовые кривые — $J_1 = 1.0, J'_1 = -2.0, J_2 = 1.0, J'_2 = -0.5, H = 2$, оранжевые — $J_1 = -0.2, J'_1 = -0.4, J_2 = -1.0, J'_2 = -0.2, H = 2$

ациям, при которых система обладает лишь одной конфигурацией (фрустрации отсутствуют). Поэтому все остальные найденные значения статистического веса (при $T \rightarrow 0$), выраженные через $\varphi, \rho, \psi, \sqrt{2}$ и другие математические сечения, в том числе и новые (безымянные), приходящегося на один узел цепочки, помимо того что они являются числами Перрона [17–19], соответствуют определенным фрустрирующим состояниям системы, т. е. в основном состоянии наблюдается бесконечно много конфигураций,

в том числе и без какой-либо трансляционной инвариантности. Следует отметить, что в модели Изинга энтропия достигает своего максимального значения $\ln 2$ в двух случаях: 1) При стремлении температуры к бесконечности, при которой статистические веса всех 2^N конфигураций при любых значениях обменных интегралов совпадают. 2) В парамагнетике, в котором все обменные интегралы равны нулю, статистические веса всех 2^N конфигураций совпадают при любой температуре, так что энтропия равна

$\ln 2$ при всех температурах, и фактически парамагнетик является абсолютно фрустрированной системой, что впервые отмечено в работе [14].

Можно показать, что фрустрирующее значение нуль-температурной энтропии определяется как предел некоторой последовательности в следующем виде:

$$S_{fr} = \lim_{N \rightarrow \infty} \ln \left[\frac{\tilde{Z}_{N+1}}{\tilde{Z}_N} \right], \quad (40)$$

где \tilde{Z}_{N+1} — число допустимых конфигураций в основном состоянии для $(N+1)$ узлов, \tilde{Z}_N — число допустимых конфигураций в основном состоянии для N узлов.

Фрустрационную нуль-температурную намагниченность также можно найти как предел последовательности

$$M_{fr} = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{M_\Sigma}{\tilde{Z}_N}, \quad (41)$$

где M_Σ — общая (суммарная) намагниченность всех допустимых конфигураций в основном состоянии.

После подсчета возможных конфигураций \tilde{Z}_N для конкретного числа узлов N для случая только ближайших соседей во внешнем магнитном поле была определена последовательность

$$\tilde{Z}_N^\varphi = 2, 1, 3, 4, 7, 11, 18, 29, 47, 76, \dots$$

Полученная последовательность чисел известна как последовательность Люка, которая задается рекуррентным соотношением $a_n = a_{n-1} + a_{n-2}$ с начальными значениями $a_0 = 2$ и $a_1 = 1$.

Как известно [20–22], отношение $\tilde{Z}_{N+1}^\varphi / \tilde{Z}_N^\varphi$ стремится к золотому сечению φ , а следовательно, $\ln(\tilde{Z}_{N+1}^\varphi / \tilde{Z}_N^\varphi)$ стремится к натуральному логарифму золотого сечения $\ln \varphi$.

В свою очередь, можно показать, что общая намагниченность для всех допустимых конфигураций в основном состоянии M_Σ для случая только ближайших соседей во внешнем магнитном поле представлена последовательностью чисел Фибоначчи с таким же рекуррентным соотношением, как и у чисел Люка, $a_n = a_{n-1} + a_{n-2}$, но с начальными условиями $a_0 = 0$ и $a_1 = 1$

$$M_\Sigma^\varphi = 0, 1, 1, 2, 3, 5, 8, 13, 21, 34, \dots$$

Взяв отношение последовательности Фибоначчи к последовательности Люка $M_\Sigma^\varphi / \tilde{Z}_N^\varphi$ в термодинамическом пределе ($N \rightarrow \infty$), получим значение фрустрационной намагниченности равное $1/(2\varphi - 1)$.

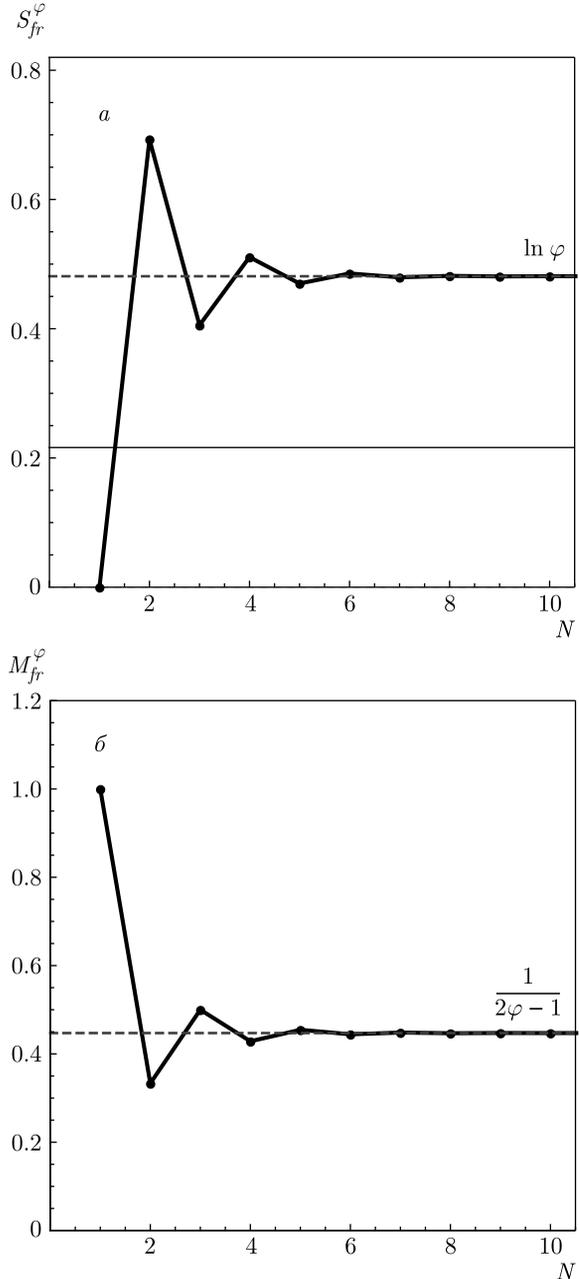


Рис. 17. Наглядное представление сходимости последовательности $\ln(\tilde{Z}_{N+1}^\varphi / \tilde{Z}_N^\varphi)$ к нуль-температурному значению энтропии равной $\ln \varphi$ (а) и последовательности $M_\Sigma^\varphi / \tilde{Z}_N^\varphi$ к нуль-температурному значению намагниченности равной $1/(2\varphi - 1)$ (б)

В правильности полученных выше результатов можно убедиться, глядя на рис. 17. Видно, что последовательности

$$\ln(\tilde{Z}_{N+1}^\varphi / \tilde{Z}_N^\varphi) \quad \text{и} \quad M_\Sigma^\varphi / \tilde{Z}_N^\varphi$$

быстро сходятся соответственно к нуль-температурной энтропии равной $\ln \varphi$ и нуль-температурной намагниченности равной $1/(2\varphi - 1)$.

При учете взаимодействия не только между ближайшими, но и между вторыми соседями в магнитном поле при антиферромагнитных взаимодействиях и тех и других возникают два фрустрирующих поля. Значение нуль-температурной намагниченности в первом фрустрирующем поле выражается отношением некоторых последовательностей чисел, первая из которых определяется по правилу $a_n = a_{n-3} + a_{n-4}$ с начальными значениями $a_0 = 1$ и $a_1 = a_2 = a_3 = 1$:

$$M_{\Sigma}^{\xi} = 0, 0, 0, 1, 0, 0, 1, 1, 0, 1, 2, 1, 1, 3, \dots$$

Вторая последовательность определяется по тому же правилу $a_n = a_{n-3} + a_{n-4}$, но с начальными значениями $a_0 = 4, a_1 = a_2 = 0, a_3 = 3$

$$\tilde{Z}_N^{\xi} = 4, 0, 0, 3, 4, 0, 3, 7, 4, 3, 10, 11, 7, 13, \dots$$

Взяв отношение первой последовательности ко второй при $N \rightarrow \infty$, получим значение нуль-температурной намагниченности $1/(\xi + 4\xi^3 - \xi^4)$ с соответствующей энтропией равной $\ln \xi$.

Значение намагниченности во втором фрустрирующем поле представлено отношением последовательности коров Нараяны [23, 24] с рекуррентным уравнением $a_n = a_{n-1} + a_{n-3}$ и начальными значениями $a_0 = a_1 = a_2 = 1$:

$$M_{\Sigma}^{\psi} = 1, 1, 1, 2, 3, 4, 6, 9, 13, 19, 28, \dots$$

к последовательности с тем же рекуррентным уравнением, что и последовательность Нараяны, но с начальными значениями $a_0 = 3, a_1 = a_2 = 1$:

$$\tilde{Z}_N^{\psi} = 3, 1, 1, 4, 5, 6, 10, 15, 21, \dots$$

Отметим, что приведенная последовательность \tilde{Z}_N^{ψ} до сих пор не изучена. Отношение данных последовательностей при $N \rightarrow \infty$ дает значение нуль-температурной намагниченности $\psi^3/(\psi^2 + 3)$, а соответствующая энтропия равна натуральному логарифму сверхзолотого сечения $\ln \psi$. Сходимости последовательностей проиллюстрированы на рис. 18.

При ферромагнитных взаимодействиях ближайших соседей и антиферромагнитных взаимодействиях вторых соседей намагниченность равна отношению последовательности, задаваемой рекуррентным уравнением $a_n = a_{n-1} + a_{n-4}$ с начальными значениями $a_0 = 0, a_1 = a_2 = a_3 = 1$:

$$M_{\Sigma}^{\mu} = 0, 1, 1, 1, 1, 2, 3, 4, 5, 7, 10, 14, 19, 26, \dots,$$

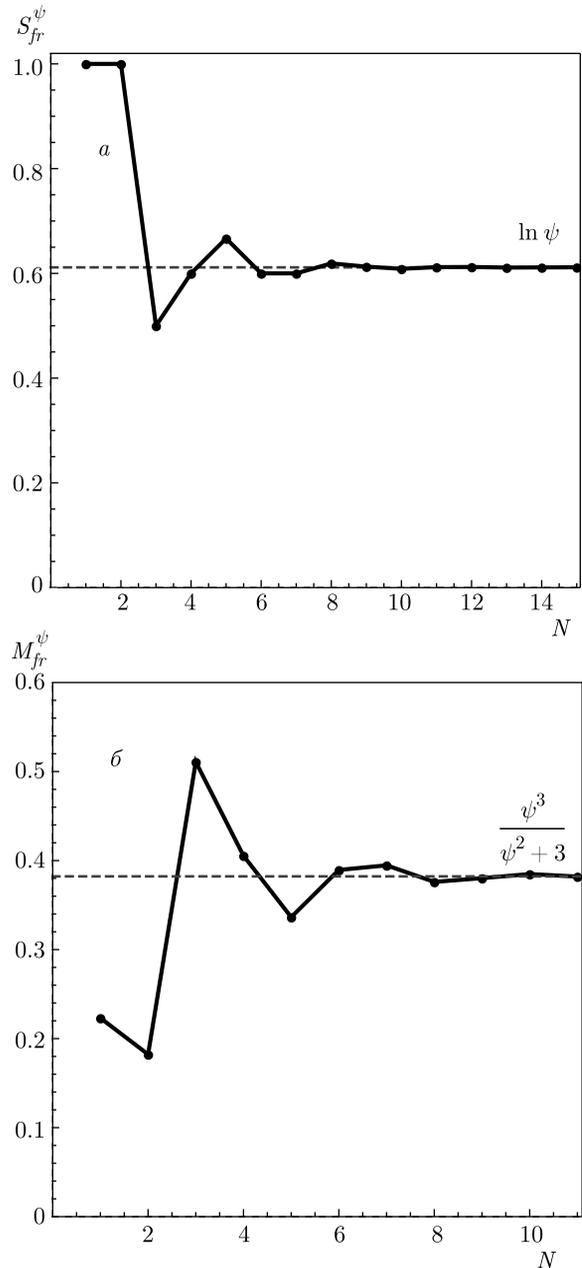


Рис. 18. Наглядное представление сходимости последовательности $\ln(\tilde{Z}_{N+1}^{\psi}/\tilde{Z}_N^{\psi})$ к нуль-температурному значению энтропии равной $\ln \psi$ (а) и последовательности $M_{\Sigma}^{\psi}/\tilde{Z}_N^{\psi}$ к нуль-температурному значению намагниченности равной $\psi^3/(\psi^2 + 3)$ (б)

к последовательности с тем же рекуррентным уравнением $a_n = a_{n-1} + a_{n-4}$, но с начальными значениями $a_0 = 4, a_1 = a_2 = a_3 = 1$:

$$\tilde{Z}_N^{\mu} = 4, 1, 1, 1, 5, 6, 7, 8, 13, \dots$$

Обратим внимание на то, что последовательность \tilde{Z}_N^{μ} также до настоящего момента не была исследо-

вана. При $N \rightarrow \infty$ отношение последовательностей дает значение нуль-температурной намагниченности $\mu^4/(\mu^3 + 4\mu + 1)$ с энтропией равной $\ln \mu$.

Другие значения нуль-температурных энтропий и нуль-температурных намагниченностей, представленные в данной работе, могут быть записаны через пределы последовательностей (также известных из математики целочисленных последовательностей [20, 21, 25–27]) только с помощью формул (40) и (41) без привлечения формализма трансфер-матрицы Крамерса – Ваннье. Однако многие из встречаемых последовательностей являются неизученными.

Таким образом, установлено, что фрустрационные свойства модели Изинга тесным образом связаны с достижениями в математике чисел, известными уже на протяжении столетий.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В данном исследовании проведено обобщение модели Изинга на произвольное число трансляций линейной цепочки в присутствии магнитного поля. Методом трансфер-матрицы Крамерса – Ваннье получено точное аналитическое решение обобщенной модели Изинга при учете различных взаимодействий между ближайшими и вторыми соседями, находящимися в магнитном поле. Найдены фрустрирующие поля не только при наличии ближайших, но и вторых соседей. Исследованы некоторые частные случаи обобщенной модели Изинга при учете ближайших и вторых соседей во внешнем магнитном поле. Следует особо отметить, что статистический вес (при $T \rightarrow 0$), приходящийся на один узел цепочки, является числом Перрона. Значения нуль-температурных энтропий и намагниченностей выражены исключительно через известные и новые (безымянные) математические сечения.

Установлено, что значения нуль-температурных энтропий, так же как и нуль-температурных намагниченностей, могут быть выражены соответственно через предел натурального логарифма отношения определенных последовательностей (40) и предел отношения последовательностей (41). И, что немаловажно, для этого не требуется знание трансфер-матрицы Крамерса – Ваннье! Достаточно лишь сосчитать число допустимых конфигураций и намагниченностей в основном состоянии для конкретного числа узлов цепочки в термодинамическом пределе.

Финансирование. Работа выполнена в рамках государственного задания Министерства науки и высшего образования РФ (тема «Квант», № АААА-А18-118020190095-4) и «Сплавы» (№ АААА-А19-119070890020-3) и при частичной поддержке Уральского отделения Российской академии наук (проект № 18-2-2-11).

ЛИТЕРАТУРА

1. I. Syozi and S. Naya, Prog. Theor. Phys. **23**, 374 (1960).
2. I. Syozi and S. Naya, Prog. Theor. Phys. **24**, 829 (1960).
3. I. Syozi, Phase Transitions and Critical Phenomena, Vol. 1, ed. by C. Domb and M. S. Green, Academic, New York (1972).
4. L. Onsager, Phys. Rev. **65**, 117 (1944).
5. T. Utiyama, Prog. Theor. Phys. **6**, 907 (1951).
6. G. H. Wannier, Phys. Rev. **79**, 357 (1950).
7. R. M. F. Houtappel, Prog. Theor. Phys. **16**, 425 (1950).
8. K. Kanô and S. Naya, Prog. Theor. Phys. **10**, 158 (1953).
9. Е. С. Цуварев, Ф. А. Кассан-Оглы, А. И. Прошкин, ЖЭТФ **3**, 504 (2020).
10. Е. С. Цуварев, Ф. А. Кассан-Оглы, ЖЭТФ **6**, 1125 (2020).
11. Р. Бэкстер, Точно решаемые модели в статистической механике, Мир, Москва (1985).
12. H. A. Kramers and G. H. Wannier, Phys. Rev. **60**, 252 (1941).
13. H. A. Kramers and G. H. Wannier, Phys. Rev. **60**, 263 (1941).
14. А. В. Зарубин, Ф. А. Кассан-Оглы, А. И. Прошкин, А. Е. Шестаков, ЖЭТФ **155**, 914 (2019).
15. F. A. Kassar-Ogly, Phase Transitions **74**, 353 (2001).
16. E. Ising, Zeitschrift für Physik **21**, 253 (1925).
17. Q. Wu, Mathem. Comput. **79**, 2387 (2010).
18. D. Lind, J. Number Theory **40**, 211 (1992).
19. D. W. Boyd, Mathem. Comput. **45**, 243 (1985).

20. N. J. A. Sloane, *A Handbook of Integer Sequences*, Academic Press (1973).
21. N. J. A. Sloane and S. Plouffe, *The Encyclopedia of Integer Sequences* 1st Edition, Academic Press (1995).
22. V. E. Jr. Hoggatt, Boston: Houghton Mifflin (1969).
23. J. Allouche and T. Johnson, Journées d'Informatique Musicale, île de Tatihou, France (1996).
24. X. Lin, *Symmetry* **13**, 12 (2021).
25. M. Bicknell, *Fibonacci Quarterly* **13**, 345 (1975).
26. R. P. M. Vieira, F. R. V. Alves, and P. M. M. C. Catarino, *International Journal of Trends in Mathematics Education Research*, **3** (1), 8 (2020).
27. W. Adams and D. Shanks, *Mathem. Comput.* **39**, 255 (1982).

ЭНЕРГИИ ОБРАЗОВАНИЯ ВАКАНСИЙ КУБИЧЕСКОЙ ФАЗЫ МАГНЕТИТА В РАМКАХ DFT+U

М. И. Шутикова^{a,b*}, В. В. Стегайлов^{a,b}

^a Объединенный институт высоких температур Российской академии наук
125412, Москва, Россия

^b Московский физико-технический институт (Национальный исследовательский университет)
141701, Долгопрудный, Московская обл., Россия

Поступила в редакцию 22 марта 2021 г.,
после переработки 22 марта 2021 г.
Принята к публикации 20 мая 2021 г.

В рамках теории функционала спиновой плотности с учетом сильных электронных корреляций (метод DFT+U) вычислены свойства катионных вакансий кубической фазы магнетита Fe₃O₄ (магнетита). Проанализировано влияние ключевых параметров модели (значения эффективной поправки Хаббарда, размера расчетной сверхячейки, начальных приближений к волновым функциям и электронной плотности) на описание электронной структуры кубической фазы магнетита. Предложена процедура поиска решения с наименьшей полной энергией, решающая свойственную для DFT+U проблему локальных минимумов. Охарактеризованы найденные варианты зарядового и орбитального упорядочения основного состояния электронной системы. Описаны различные варианты оптимизации структуры моделей катионных вакансий и определены соответствующие энергии формирования.

DOI: 10.31857/S0044451021080101

1. ВВЕДЕНИЕ

Магнетит (Fe₃O₄) — магнитный оксид железа с сильными корреляциями в электронной подсистеме; их присутствие сильно усложняет и обогащает физику его электронного строения [1, 2]. Поэтому для вычисления свойств магнетита требуется теоретический метод, способный учитывать эффекты электронных корреляций. Стандартные приближения обменно-корреляционных функционалов в методе теории функционала плотности (density functional theory, DFT) сделать этого не позволяют.

В последнее время в работах по *ab-initio* расчетам свойств магнетита для учета сильных электронных корреляций в основном используется два подхода: 1) полуэмпирическая поправка Хаббарда (метод DFT+U [3]) [4–22] и 2) гибридные функционалы [5, 9, 23]. Расчеты с гибридными функционалами — чрезвычайно ресурсоемкие, потому в настоящее время практически невозможно использовать этот метод для получения модели дефектов магнетита, в

которой требуется рассмотреть несколько дефектных конфигураций и учесть эффект релаксации локального окружения дефекта.

Метод DFT+U был применен для описания низкотемпературной фазы магнетита [8, 12–22] и его кубической фазы [4–7, 9–11, 16, 18]. Он требует обоснованного выбора значения полуэмпирической поправки. Один из способов ее верификации заключается в сравнении вычисленного значения ширины запрещенной зоны с ее экспериментальным значением [5, 18, 24]. Однако существующие в настоящее время экспериментальные данные не позволяют сделать однозначного утверждения о том, существует ли в кубической фазе магнетита запрещенная зона или нет. Во Введении к работе [5] приводятся ссылки на экспериментальные данные, интерпретация которых позволяет говорить о ее существовании.

Методу DFT+U присуща проблема поиска решения, обладающего наименьшей полной энергией среди множества локальных минимумов. Данная проблема обсуждается в ряде работ, посвященных исследованию соединений других d- и f-металлов с недостроенными оболочками [25–28]. Основным отличием подхода DFT+U от стандартных приближений теории функционала плотности является его за-

* E-mail: shutikova.mi@phystech.edu

Таблица 1. Литературные данные. Энергии образования $E_{V_A}^F$ и $E_{V_B}^F$ (эВ) вакансий в А- и В-подрешетках магнетита и их разница $\Delta_{AB} = E_{V_A}^F - E_{V_B}^F$ (эВ)

Метод	$E_{V_A}^F$	$E_{V_B}^F$	Δ_{AB}	
DFT+U	—	—	1.10	[4]
	3.45	2.30	1.15	[6]
	—	—	1.01	[7]
	—	—	1.27	[10]
DFT	2.69	0.83	1.86	[29]

висимость от орбитальных степеней свободы системы. Эвристические методы поиска решений с наименьшей полной энергией в рамках DFT+U были предложены в работах [26, 27]. Можно назвать их основой контроль за получаемыми в DFT+U числами заполнения локализованных орбиталей. Попыток их применения для исследования кубической фазы магнетита в литературе найдено не было.

Свойства дефектов магнетита в рамках DFT и DFT+U получены в небольшом числе работ [4, 6, 7, 10, 11, 29]. В работе [29] расчет свойств катионных дефектов кубической фазы магнетита проводился без учета сильных электронных корреляций. В работах [10, 11] для рассмотренных в рамках DFT+U катионных и анионных дефектов были подробно описаны свойства локального окружения, но не представлены энергии образования. В некоторых (DFT+U)-работах [4, 7, 10] приводится только разница в энергиях образования вакансий А- и В-подрешеток¹⁾ магнетита (табл. 1) и отмечается, что образование В-вакансии более вероятно, чем образование А-вакансии. В недавней работе по исследованию кислородных вакансий в перовските SrTiO₃ [28] обсуждаются дополнительные приближения (метод DFT+U+V), которые могут потребоваться для исследования точечных дефектов в оксидах; однако в перечисленных выше работах по исследованию дефектов магнетита такой подход не применялся.

Значения энергий образования дефектов, полученные в рамках DFT+U в работе [6], очень отличаются от значений, полученных ранее в работе [29] без поправки Хаббарда. Действительно, энергии образования А- и В-вакансий, полученные в работе [6],

¹⁾ В современных работах по исследованию свойств магнетита [5, 10, 16] для обозначения его тетраэдрической и октаэдрической катионных подрешеток используются буквы А и В соответственно.

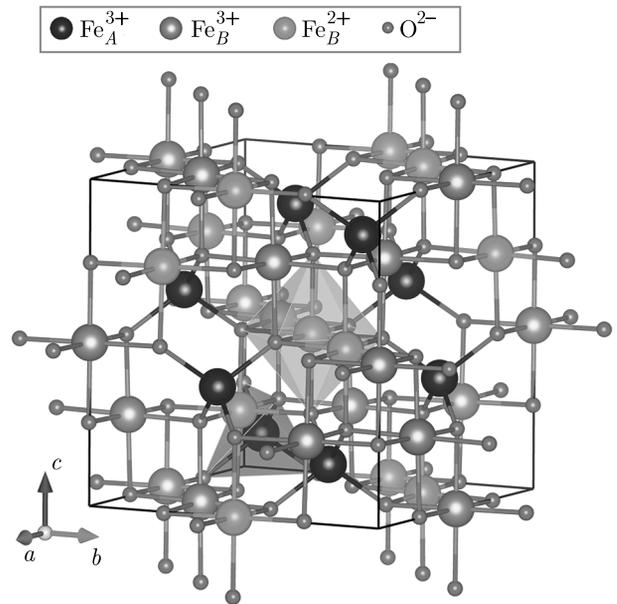


Рис. 1. Кристаллическая структура кубической фазы магнетита (для визуализации используется VESTA [31]). Ионы железа и кислорода представлены крупными и маленькими шарами соответственно. Катионы А-подрешетки отмечены темно-синим цветом, двух- и трехвалентные катионы В-подрешетки — голубым и золотистым соответственно (показан один из вариантов распределения Fe²⁺ и Fe³⁺ по узлам В-подрешетки)

составляют 3.45 эВ и 2.30 эВ соответственно, в то время как без поправки для тех же дефектов были получены значения 2.69 эВ и 0.83 эВ [29] (табл. 1). Для тетраэдрического и октаэдрического междоузлий в работе [6] были получены энергии образования 1.25 эВ и 0.81 эВ соответственно, но без учета поправки в работе [29] их значения составляют 5.40 эВ и 3.26 эВ. Концентрации дефектов в равновесных условиях экспоненциально зависят от энергий образования, поэтому такие разногласия в теоретических предсказаниях дают огромные неточности в определении концентраций дефектов.

Противоречивые литературные данные определили цель настоящей работы — разобраться в причинах возникновения таких отличий и получить энергии образования катионных вакансий кубической фазы Fe₃O₄ в рамках DFT+U. Однако с первой попытки сделать это не удалось: были получены отрицательные энергии образования дефектов. При этом вычисленные ранее в других работах значения не были отрицательными (табл. 1). Поэтому мотивацией работы стал поиск таких приближений и параметров расчета, которые позволили бы получить адекватные свойства дефектов кубической фазы в DFT+U. Пристальное внимание было уделено

существующим в литературе *ab-initio* моделям бездефектной кубической фазы магнетита.

1.1. Свойства бездефектной кубической фазы магнетита в рамках DFT+U

Известно, что в нормальных условиях магнетит имеет структуру обращенной шпинели ($Fd\bar{3}m$). Элементарная ячейка этой структуры (рис. 1) содержит 56 атомов (24 катиона железа и 32 аниона кислорода согласно ионной модели). Анионы кислорода образуют гранецентрированную подрешетку, искаженную внедренными в ее междоузлия катионами железа. Одну восьмую имеющихся тетраэдрических междоузлий (позиции $8a$ в нотации Вайкоффа) занимают трехвалентные катионы железа Fe_A^{3+} , образуя тетраэдрическую или А-подрешетку. Одну вторую имеющихся октаэдрических междоузлий (позиции $16d$) занимают в произвольном порядке двух- и трехвалентные катионы железа, Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} , образуя октаэдрическую или В-подрешетку. Формулу магнетита в этих обозначениях можно записать как $(Fe^{3+})_A(Fe^{2+}Fe^{3+})_BO_4^{2-}$ [30]. До температуры Нееля (850 К) магнетит находится в состоянии ферримагнитного упорядочения: магнитные моменты катионов А- и В-подрешеток направлены противоположным образом и некомпенсированы.

Для задания структуры обращенной шпинели требуются два параметра: постоянная решетки a_0 и кислородная координата x . Экспериментальные значения этих параметров приведены в табл. 2. Кислородная координата показывает степень искажения анионной подрешетки из-за размещения в ней катионов железа. В работе [32] отмечается, что ее значение остается практически постоянным вплоть до 600 К. Если бы кислородная подрешетка была идеальной гранецентрированной ($x = 0.2500$), то углы между положительными направлениями трех осей всех октаэдров Fe_BO_6 составляли бы 90° . При наблюдаемом для магнетита экспериментальном значении ($x = 0.2549$) эти углы — меньше 90° , и октаэдры Fe_BO_6 искажены одинаковым образом.

Кубическая фаза магнетита ограничена снизу низкотемпературной фазой, в которую она переходит при температуре Вервея (120 ± 5 К) [33]. Считается, что низкотемпературная фаза магнетита имеет не кубическую, а моноклинную симметрию [34–37]. Элементарная ячейка низкотемпературной фазы имеет размеры $(\sqrt{2}a_0, \sqrt{2}a_0, 2a_0)$, где a_0 — постоянная решетки кубической фазы, и содержит 224 атома. Согласно уточненным данным [37], структу-

ра низкотемпературной фазы при 90 К описывается с помощью не менее 168 координат (замороженных фононных мод с амплитудами менее 0.24 \AA).

В связи с тем, что основным состоянием магнетита является состояние не с кубической, а с низкотемпературной симметрией, вычисление свойств бездефектной кубической фазы в рамках DFT+U остается возможным только с условием сохранения ее симметрии. В противном случае, при оптимизации геометрии без сохранения симметрии, будет найдено решение с искажением решетки. Такое искажение решетки с потерей кубической симметрии при оптимизации координат атомов в рамках DFT+U показано в работе [18]. Искажение дают также вычисления с гибридным функционалом B3LYP [23]. При оптимизации геометрии в методе DFT без учета сильных электронных корреляций такого искажения не наблюдается [18, 23]; в литературе это объясняется тем, что стандартные обменно-корреляционные функционалы DFT не дают точного описания низкотемпературной фазы магнетита.

Только в очень давней работе [38] по исследованию кубической фазы магнетита оптимизация геометрии не проводилась совсем; расчеты выполнялись с фиксированной ионной конфигурацией, соответствующей экспериментальным значениям кислородной координаты и постоянной решетки. В настоящее время в рамках DFT+U для кубической фазы магнетита вычисляются оптимизированные параметры a_0 и x [5, 6, 9, 10, 16, 18]. При этом оптимизированные в рамках DFT+U значения постоянной решетки оказываются примерно на 1–2% выше экспериментального значения (табл. 2), и чем больше используемое значение поправки Хаббарда, тем больше отклонение от экспериментальных данных [5]. Оптимизированные значения кислородной координаты также могут отличаться от экспериментального значения (табл. 2). В некоторых работах подробного описания того, какие именно параметры оптимизировались (объем, векторы решетки, координаты атомов), а какие были фиксированы, не приводится. Зачастую указывается только оптимизированное значение постоянной решетки, но не значение кислородной координаты. Не указывается и то, какая начальная ионная конфигурация использовалась при запуске расчетов с оптимизацией геометрии. В работах [5, 16] проводилась оптимизация и постоянной решетки, и кислородной координаты; в этих работах и в работе [9] указывается, что оптимизация проводилась с сохранением симметрии кубической фазы.

Таблица 2. Литературные данные. Свойства кубической фазы магнетита, полученные в рамках DFT+U, гибридных функционалов, DFT (без поправки Хаббарда) и экспериментальные данные. Обозначения: a_0 (Å) — постоянная решетки, x — кислородная координата, μ ($\mu_B/f.u.$) — магнитный момент формульной единицы Fe_3O_4 , $\mu_{Fe_A^{3+}}$, $\mu_{Fe_B^{2+}}$, $\mu_{Fe_B^{3+}}$, $\mu_{O^{2-}}$ (μ_B) — магнитные моменты частиц А-, В- и О-подрешеток, E_g (мэВ) — ширина запрещенной зоны, U_{eff} (эВ) — значение эффективной полуэмпирической поправки Хаббарда, N_{at} — число атомов в расчетной сверхячейке

a_0	x	μ	$\mu_{Fe_A^{3+}}$	$\mu_{Fe_B^{2+}}$	$\mu_{Fe_B^{3+}}$	$\mu_{O^{2-}}$	E_g	Метод	U_{eff}	N_{at}	Год	
8.446	—	4.0	—	—	—	—	—	DFT+U	3.80	14	2006	[18]
8.446	0.2549	—	-3.97	+3.87		+0.04	—	DFT+U	3.20 ^a	56	2007	[16]
8.271	—	4.0	-3.68	+3.62		—	—	DFT+U	3.94	56	2013	[10]
8.488	—	4.0	-4.09	+(3.96 ÷ 3.98)		+0.03	—	DFT+U	4.00	56	2014	[9]
8.477	0.2548	—	-3.93	+3.64	+4.01	—	—	DFT+U	3.00	14	2017	[5]
8.491	0.2548	—	-3.96	+3.62	+4.06	—	177	DFT+U	3.50			
8.505	0.2549	—	-3.99	+3.64	+4.09	—	474	DFT+U	4.00			
8.488 ^b	—	—	-4.06	+(3.49 ÷ 4.37)		+0.03	^c	HSE 25 %		56	2014	[9]
8.389	0.2547	—	-4.21	+3.79	+4.27	—	421	HSE 25 %		14	2017	[5]
8.488 ^b	—	—	-3.92	+(3.82 ÷ 3.85)		+0.06	—	HSE 15 %		56	2014	[9]
8.395	0.2548	—	-4.10	+3.92	+4.03	—	—	HSE 15 %		14	2017	[5]
8.370	—	4.0	-3.63	+3.60		+0.11	—	DFT		56	2003	[29]
8.377	0.2545	—	-3.40	+3.52		+0.08	—	DFT		56	2007	[16]
8.387	—	4.0	-3.47	+(3.55 ÷ 3.58)		+0.08	—	DFT		56	2014	[9]
8.380	0.2546	—	-3.58	+3.63		—	—	DFT		14	2017	[5]
8.394	—							эксп.	XRD ^d		1951	[43]
8.394	—							эксп.	XRD		1953	[44]
8.398	—							эксп.	XRD		1977	[34]
8.394	0.2549	—						эксп.	XRD		1981	[45]
8.396	0.2549	—						эксп.	XRD		1996	[32]
—							100*	эксп.	PES ^e		1997	[41]
—							70*	эксп.	STS ^f		2020	[39]

Примечание. ^a Вместо U_{eff} в работе использовались значения $U = 4.0$ эВ, $J = 0.8$ эВ.

^b Расчет с гибридными функционалами проводился для геометрии, оптимизированной в DFT+U.

^c Запрещенная зона есть, но ее ширина не указана в статье.

^d Рентгеноструктурный анализ.

^e Фотоэмиссионная спектроскопия.

^f Сканирующая туннельная спектроскопия.

* В обоих случаях речь идет о наблюдаемой в эксперименте псевдощели.

Экспериментальные данные [39–41] указывают на то, что ниже температуры перехода Вервея магнетит является полупроводником. Для ширины его запрещенной зоны в этой области температур были получены оценки: 150 мэВ [41], 100 мэВ [40] и 320 мэВ [39]. Предполагается, что в низкотемпературной фазе магнетита кроме ферримагнитного может наблюдаться также зарядовое, орбитальное и тримеронное упорядочения [42]. Однако остается открытым вопрос о том, какие из черт низкотемпературной фазы и в какой мере характерны для кубической фазы магнетита.

Обоснование выбранного значения полуэмпирической поправки для учета сильных электронных корреляций является важной деталью вычислений в методе DFT+U. Значения $U_{eff} = U - J$, используемые в работах по моделированию бездефектной кубической фазы магнетита, находятся в основном в интервале от 3.2 до 4.0 эВ (табл. 2). В некоторых работах [9, 10] при выборе поправки U_{eff} ссылаются на значения, полученные ранее в других работах. Авторы [5, 18] выбирали значение U_{eff} исходя из ширины запрещенной зоны (E_g). В работе [18] значение E_g , вычисленное после оптимизации геометрии (без сохранения кубической симметрии), сравнивалось с экспериментальным значением ширины запрещенной зоны для низкотемпературной фазы. В работе [5] значение E_g для кубической фазы магнетита, полученное после оптимизации геометрии с сохранением кубической симметрии, сравнивалось со значением, вычисленным с помощью гибридных функционалов — метода, не требующего полуэмпирической поправки. По мнению авторов [5] значение $U_{eff} = 3.5$ эВ дает более точные предсказания для ширины запрещенной зоны и магнитных моментов катионов кубической фазы магнетита.

Интересно отметить, что авторы [18] при верификации U_{eff} по ширине запрещенной зоны низкотемпературной фазы проводили оптимизацию геометрии в сверхячейках с 56 атомами, в то время как элементарная ячейка низкотемпературной фазы гораздо больше. Возникает вопрос, насколько велики погрешности верификации U_{eff} при моделировании низкотемпературной фазы в сверхячейках, меньших ее элементарной ячейки, особенно при учете ее сложной геометрии [37]. В работе [5] при верификации U_{eff} по E_g и магнитным моментам катионов кубической фазы использовались некубические сверхячейки с 14 атомами, меньшего размера, чем элементарная ячейка кубической фазы с 56 атомами. Возникает аналогичный вопрос: не может ли ис-

пользование малых сверхячеек внести в модель артефакты, связанные с их размером.

В большинстве работ, выполненных для кубической фазы магнетита в DFT+U [9, 10, 16, 18], как видно из (табл. 2), не предсказывается разница магнитных моментов двух- и трехвалентных В-катионов и запрещенная зона. Катионы октаэдрической подрешетки в этих моделях представляются одинаковыми частицами, подобно тому, какими они получаются в модели DFT, где сильные электронные корреляции не учитываются. Однако в работе [5] в рамках DFT+U с очень близкими к используемым в остальных работах значениями U_{eff} разница между $\mu_{Fe_B^{3+}}$ и $\mu_{Fe_B^{2+}}$ была получена и составила $0.44 \mu_B^2$). Разнице Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} для кубической фазы предсказывают также расчеты с гибридным функционалом HSE06 [5, 9]. При этом в зависимости от доли точного обмена в функционале Хартри–Фока и в зависимости от выбранного значения U_{eff} в DFT+U в этих подходах может быть также предсказана ненулевая ширина запрещенной зоны в кубической фазе магнетита. При условии, что ширина запрещенной зоны не будет слишком большой, модель кубической фазы с запрещенной зоной не вызовет противоречий с наблюдаемым на эксперименте порядком скачка проводимости при переходе Вервея [41].

Авторы [5] указывают, что причина, по которой отличия В-катионов и ширина запрещенной зоны появились в модели кубической фазы, — это предположение о том, что волновые функции и электронная плотность необязательно должны удовлетворять дополнительным требованиям симметрии, накладываемым на них симметрией решетки кубической фазы. В работе [5] показано, что такие не обладающие дополнительной симметрией решения находятся ниже по энергии, чем симметричные.

Ввести такое предположение кажется естественным при расчетах свойств точечных дефектов. Поэтому вызывают интерес данные по расчету дефектов в работе [10], где, несмотря на значение поправки, при котором в работе [5] уже была получена запрещенная зона и разница в магнитных моментах В-катионов, ничего такого получено не было. Некоторые детали вычислений в работе [10] не упоминаются, поэтому установить точнее причины отличий в предсказаниях работ [5, 10] не представляется воз-

²⁾ Точнее, наверное, сказать, что отличия в вычисленных значениях магнитных моментов (и зарядов) В-катионов позволяют разделить их на две группы, интерпретировать как двух- и трехвалентные и обозначить Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} , соответственно, поскольку разница составляет менее $1 \mu_B$.

возможным. В работе [9] в DFT+U с также уже достаточно большим значением поправки U_{eff} ни отличий в магнитных моментах В-катионов, ни E_g получено не было (в этой работе рассматривался только бездефектный магнетит, поэтому можно предположить, что ее авторы при оптимизации геометрии накладывали на волновые функции и плотность те требования симметрии, от которых авторы [5] отказались).

К числу приближений, о которых не упоминается в деталях вычислений большинства работ по исследованию кубической фазы магнетита в рамках DFT+U (явные упоминания о них встречаются, пожалуй, только в работах без поправки Хаббарда [29, 38]), относятся начальные приближения к волновым функциям и электронной (спиновой) плотности, необходимые для запуска самосогласованного расчета в методе теории функционала плотности. В работе [18] вскользь отмечается, что некоторые решения для кубической фазы, обладающие наименьшей полной энергией, были получены с использованием волновых функций и плотности, вычисленных ранее для геометрии с более низкой симметрией. В работе [7] для магнетита приводятся разницы в полных энергиях для состояний с ферро- и ферри-магнитным упорядочением. Такие данные позволяют предположить, что задание произвольно выбранных начальных приближений к волновым функциям и электронной плотности вовсе не гарантирует нахождения решения с наименьшей полной энергией, но может приводить к локальному минимуму, причем скорее всего к тому, ближе к которому они оказались. Иначе не совсем ясно, как авторам [7] удалось найти решение с ферромагнитным упорядочением, не характерным для магнетита.

Проведенный литературный обзор показал, что использование метода DFT+U для вычисления свойств кубической фазы магнетита и ее дефектов требует внимания к деталям расчета. Возможно, получение отрицательных энергий образования дефектов связано с тем, что для бездефектной кубической фазы в рамках DFT+U еще не было достигнуто состояние с наименьшей полной энергией. При этом, поскольку расчеты проводились без наложения дополнительных требований симметрии на волновые функции и плотность, причина того, что основное состояние не было достигнуто, кроется, по-видимому, в существовании множества локальных минимумов системы и трудности нахождения основного состояния среди них.

В данной работе в рамках DFT+U исследуется чувствительность свойств кубической фазы к пара-

метрам вычислений, после чего в рамках полученного набора допущений вычисляются свойства изолированных катионных вакансий магнетита.

2. ДЕТАЛИ ВЫЧИСЛЕНИЙ

Все вычисления в работе проводились в рамках теории функционала спиновой плотности с учетом сильных электронных корреляций (метод DFT+U). Расчеты выполнялись в коде VASP [46, 47] с базисом плоских волн и приближением псевдопотенциала. PAW-псевдопотенциалы, полученные в приближении обменно-корреляционного функционала PBE и включающие восемь и шесть валентных состояний для железа и кислорода соответственно, были взяты из библиотеки этого кода.

Начальные приближения к волновым функциям и электронной плотности. Начальные приближения к волновым функциям и электронной плотности задавались двумя способами. В первом случае задавались начальные магнитные моменты катионов и анионов, а начальные приближения к волновым функциям и электронной плотности строились в соответствии с ними. Для этого случая рассматривались различные схемы начального магнитного упорядочения. Во втором случае в качестве начальных приближений к волновым функциям и плотности при запуске нового расчета с плавным изменением одного из параметров расчета брались волновые функции и плотность решений, полученных ранее. Дополнительных, определяемых симметрией решетки кубической фазы, требований симметрии на волновые функции и плотность в расчетах дефектной и бездефектной конфигураций не налагалось.

Учет сильных электронных корреляций. Учет сильных электронных корреляций осуществлялся по схеме, предложенной в работе [48]. Большая часть представленных результатов была получена с использованием $U_{eff} = 3.5$ эВ. Дополнительно обсуждаются результаты, полученные при $U_{eff} = 0$ и $U_{eff} = 5.0$ эВ. Выбор значения U_{eff} для расчета свойств дефектов магнетита проводился в модели кубической фазы, в предположении, что в ней существует запрещенная зона, а порядок ее ширины близок к наблюдаемому экспериментально выше температуры Вервея порядку ширины псевдощели в магнетите (табл. 2).

Параметры сходимости и оптимизация геометрии. Свойства бездефектного кристалла вычислялись с использованием кубической сверхячейки с

56 атомами, соответствующей элементарной ячейке кубической фазы магнетита (рис. 1), а также в сверхячейке с 14 атомами, которая была использована ранее для расчета свойств кубической фазы в работе [5]. Свойства дефектов вычислялись в кубических сверхячейках, содержащих 56 атомов и соответствующий дефект. Базисный набор плоских волн во всех случаях был ограничен энергией 550 эВ. Для суммирования по зоне Бриллюэна использовались Γ -центрированные сетки с $8 \times 8 \times 8$ и $6 \times 6 \times 6$ k -точками для сверхячеек с 14 и 56 атомами соответственно. Порог сходимости при поиске самосогласованного решения был задан равным 10^{-6} эВ, что обеспечило сходимость полной энергии и внешнего давления лучше 1.0 мэВ и 0.05 кбар соответственно. Порог оптимизации геометрии во всех случаях определялся по силам на атомы и составлял 10^{-2} эВ/Å. Оптимизация геометрии дефектных конфигураций проводилась при фиксированном равновесном значении постоянной решетки, как это было сделано ранее для дефектов магнетита в работах [10, 29].

Энергии образования вакансий. Энергии образования вакансий вычислялись по аналогии с тем, как это было сделано для дефектов магнетита ранее в работе без поправки Хаббарда [29]; при этом была использована формула, приведенная в работе [24],

$$E_V^F = E_V - E_0 + E_{Fe}, \quad (1)$$

где E_V^F – энергия образования вакансии, E_V , E_0 – полная энергия сверхячейки с дефектом и без дефекта соответственно, E_{Fe} – химический потенциал железа в магнетите. Как и в работе [29], в данной работе за химический потенциал железа в магнетите (E_{Fe}) была принята энергия, приходящаяся на атом в ферромагнитном ОЦК-железе. Однако в настоящей работе вычисления свойств дефектов проводились с учетом полуэмпирической поправки Хаббарда. Поэтому для того чтобы можно было воспользоваться формулой (1), химический потенциал железа вычислялся также с учетом поправки. При $U_{eff} = 3.5$ эВ полученные значения оптимизированной постоянной решетки и магнитного момента железа равны 2.936 Å и 2.87 μ_B соответственно, что несколько выше по сравнению с данными без поправки, 2.830 Å и 2.19 μ_B [49], и экспериментальными данными, 2.870 Å и 2.22 μ_B [49]. Полученное в этих условиях значение $E_{Fe} = -5.57$ эВ выше, чем в расчетах без учета поправки (-8.24 эВ). Также был проведен расчет с использованием экспериментальных значений постоянной решетки и магнитного момента ОЦК железа в рамках DFT+U. В этом случае химический потенциал на 0.03 эВ выше полученно-

го ранее, но внешнее давление в ОЦК-сверхячейке железа составляет 100 кбар. В работе рассматривались два типа вакансий: вакансии А- и В-подрешеток магнетита.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ

3.1. Возможность получения отрицательных энергий образования

Перед изложением основных результатов представим и кратко обсудим условия, способствующие получению отрицательных энергий образования дефектов. Расчеты проводились следующим образом. В кубической сверхячейке с 56 атомами с фиксированным значением постоянной решетки ($a = 8.490$ Å) и фиксированным значением кислородной координаты ($x = 0.2549$) создавалась вакансия, после чего все координаты атомов (и только они) оптимизировались для вычисления значения E_V в формуле (1). В бездефектной сверхячейке также проводилась оптимизация координат атомов (и только их) для получения значения E_0 в формуле (1). Вычисленные значения E_V , E_0 , E_{Fe} и E_V^F для вакансий А- и В-подрешеток представлены в табл. 3.

В этих расчетах начальные приближения к волновым функциям и электронной плотности задавались с помощью начальных магнитных моментов катионов и анионов. Начальные магнитные моменты катионов А- и В-подрешеток были заданы равными $-3.8 \mu_B$ и $+3.8 \mu_B$ соответственно, а начальные магнитные моменты анионов кислорода были заданы равными нулю. Такие значения близки к существующим литературным данным (например, результаты (DFT+U)-расчетов [9, 10, 16, 18] в табл. 2), что, как предполагалось, могло бы способствовать скорейшему нахождению минимума. В дефектных сверхячейках задавались те же начальные значения магнитных моментов, что и в бездефектном случае, за исключением магнитного момента удаленного катиона. Все вычисления проводились при $U_{eff} = 3.5$ эВ.

Таблица 3. Возможность получения отрицательных энергий образования дефектов магнетита

defect	E_V	E_0	E_{Fe}	E_V^F
V_A	-380.532	-386.513	-5.570	0.41
V_B	-381.976			-1.03

Как видно из табл. 3, расчет с такими приближениями приводит к тому, что энергия образования В-вакансии оказывается отрицательной. Хотя разница между энергиями образования вакансий А- и В-подрешеток составляет $\Delta_{AB} = 1.44$ эВ, что в целом согласуется с порядком разницы, полученной в других работах (табл. 1). Разница между полным магнитным моментом дефектной и бездефектной сверхячеек составляет $+8 \mu_B$ и $-2 \mu_B$ для А- и В-вакансии соответственно, что также согласуется с литературными данными [10, 29].

Анализ вычисленных магнитных моментов катионов показал, что в дефектных сверхячейках существуют две группы катионов В-подрешетки, в то время как в бездефектной сверхячейке все катионы октаэдрической подрешетки имеют одинаковые значения магнитных моментов. В плотностях электронных состояний, полученных для случаев с А- и В-вакансиями, существуют запрещенные зоны, однако в бездефектном случае запрещенной зоны нет. Такие расчетные данные и результаты работы [5] заставили в первую очередь пересмотреть приближения, закладываемые в модель бездефектной кубической фазы магнетита.

3.2. Свойства бездефектной кубической фазы

3.2.1. Множество локальных минимумов системы

Расчеты в сверхячейке с 14 атомами. Сверхячейки с 14 атомами использовались ранее при вычислении свойств бездефектного магнетита в рамках DFT+U в работах [5, 18]. Они — меньшего размера ($a_0/\sqrt{2}, a_0/\sqrt{2}, a_0/\sqrt{2}$), чем ячейка кубической фазы с 56 атомами, и некубические (рис. 13). Уменьшение числа атомов в расчетной сверхячейке существенно снижает ресурсоемкость вычислений, что позволяет рассмотреть большее число интересных случаев. В то же время отличия расчетной ячейки от ячейки кубической фазы с 56 атомами могут стать источником расчетных артефактов при ее использовании в периодических граничных условиях.

Вычисления проводились при $U_{eff} = 3.5$ эВ. Поиск равновесной постоянной решетки ($a_0: p(a_0) = 0$) осуществлялся следующим образом. Для значений постоянной решетки a из интервала $8.460 \div 8.510$ Å с шагом 0.005 Å проводились самосогласованные расчеты фиксированных ионных конфигураций с данным значением постоянной решетки a и фиксированным экспериментальным значением кислород-

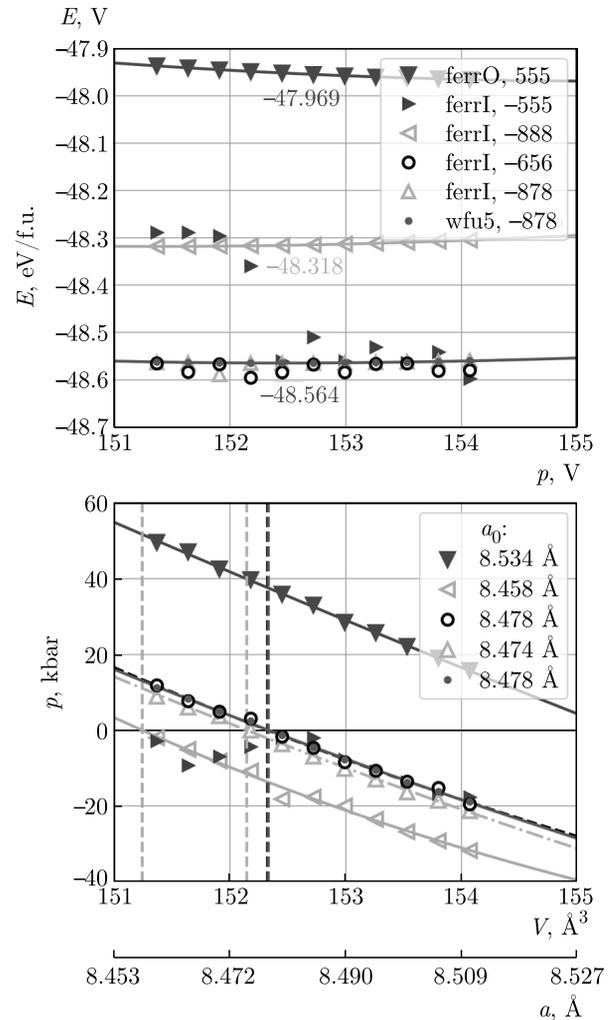


Рис. 2. Полная энергия E и внешнее давление p в зависимости от объема сверхячейки V с 14 атомами. Точки — вычисленные значения, кривые — аппроксимация уравнением состояния Винета. В легенде $p(V)$ указаны вычисленные значения равновесной постоянной решетки a_0 : $p(a_0) = 0$ для соответствующих случаев

ной координаты ($x = 0.2549$). После этого вычисленные зависимости полной энергии E и внешнего давления p от объема сверхячейки V аппроксимировались уравнением состояния Винета [50] (рис. 2).

Начальные приближения к волновым функциям и электронной плотности задавались с помощью начальных магнитных моментов анионов и катионов. Начальные магнитные моменты анионов во всех случаях задавались равными нулю. Для катионов рассматривалось два варианта задания начальных магнитных моментов, соответствующих (1) ферромагнитному (обозн. ferrO) и (2) ферримагнитному упорядочению (обозн. ferrI). Ферромагнитное на-

чальное приближение дает решение также обладающее ферромагнитным упорядочением, не характерным для магнетита. Из рис. 2 видно, что для всех рассмотренных значений постоянной решетки это ферромагнитное решение выше по энергии, чем решения, полученные с ферримагнитным начальным приближением. Это говорит о том, что с использованием ферромагнитного начального приближения найти основное состояние системы невозможно.

Для случая (2), с ферримагнитным начальным приближением (ferrI), дающим решения с более глубокими минимумами, рассматривалась зависимость результатов от конкретных значений начальных магнитных моментов. В обозначениях легенды $E(V)$ на рис. 2 три цифры рядом с обозначением заданного начального магнитного упорядочения (ferrO или ferrI) — это значения начальных магнитных моментов катионов $\mu(\text{Fe}_A^{3+})$, $\mu(\text{Fe}_B^{2+})$, $\mu(\text{Fe}_B^{3+})$ в магнетонах Бора (μ_B)³⁾. Для сравнения на рис. 2 представлены также результаты расчетов, выполненных при $U_{eff} = 3.5$ эВ с использованием в качестве начальных приближений решений, найденных при той же постоянной решетки при $U_{eff} = 5.0$ эВ (обозн. wfu5, –878). Из рис. 2 отчетливо видно, что различные начальные приближения к волновым функциям и плотности позволяют обнаружить только некоторые локальные минимумы системы. При этом от используемых начальных приближений зависит также вычисленное значение равновесной постоянной решетки.

Характер полученных локальных минимумов рассмотрен подробнее для случая с постоянной решетки $a = 8.475$ Å. Свойства решений, полученных с разными начальными приближениями при этом значении постоянной решетки, представлены в табл. 4. Значения вычисленных магнитных моментов катионов в табл. 4 показывают, что решения, найденные с использованием ферримагнитного начального приближения без отличий В-катионов (случаи ferrI, –888 и ferrI, –555), приводят к решению, также обладающему ферримагнитным упорядочением без отличий В-катионов (магнитные моменты катионов Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} практически одинаковы). При этом из табл. 4 видно, что ферромагнитное (ferrO, 555) и ферримагнитные без отличий В-катионов решения на 0.65 эВ/f.u. и 0.25 эВ/f.u. соответственно выше по энергии, чем решения, полученные с ферримагнитными начальными приближениями с раз-

Таблица 4. Свойства решений, полученных для случая с постоянной решетки $a = 8.475$ Å: разница в значениях полной энергии данного решения и решения с наименьшей полной энергией среди найденных ΔE (мэВ/f.u.) и магнитные моменты катионов μ (μ_B)

Начальные приближения	ΔE	μ		
		Fe_A^{3+}	Fe_B^{2+}	Fe_B^{3+}
ferrO, 555	+646	+4.19	+4.12	
ferrI, –888	+278	–4.00	+3.94	
ferrI, –555	+235	–4.05	+3.93	+3.95
wfu5, –878	+30.4	–4.02	+3.72	+4.10
ferrI, –878	+29.7	–4.04	+3.85	+4.00
ferrI, –656	0.0	–4.03	+3.73	+4.09

ницей В-катионов (wfu5, –878, ferrI, –878 и ferrI, –656). Последние, обладающие более низкими полными энергиями, отличаются между собой не более чем на 0.03 эВ/f.u., что на порядок меньше указанных выше отличий. Из рис. 2 видно, что только одно из этих решений (ferrI, –878) близко к $p = 0$. Решение, обладающее наименьшей полной энергией при $a = 8.475$ Å, полученное с начальным приближением ferrI, –656, характеризуется разницей в магнитных моментах двух- и трехвалентных катионов, составляющей 0.36 μ_B . Почти такой же разницей характеризуется и решение, полученное с wfu5, –878, с чуть более высокой полной энергией. Отличия этих решений видны на рис. 3, где показаны плотности электронных состояний для каждого из случаев табл. 4. Действительно, случай ferrI, –656 дает запрещенную зону и для состояний со спином вверх, и для состояний со спином вниз, а случай wfu5, –878 — только для состояний со спином вверх.

Из рис. 2 видно, что не все решения, полученные при одном и том же начальном приближении, можно аппроксимировать уравнением состояния (см., например, случай ferrI, –555: при различных постоянных решетки это начальное приближение приводит к решениям, не укладывающимся на одну кривую в рамках общей для всех точности). Так происходит и в случае ferrI, –656. На рис. 4 представлены свойства решений, полученных с ferrI, –656 при разных значениях постоянной решетки (это увеличенное изображение зависимости $E(V)$ с ferrI, –656 с рис. 2). Видно, что одно и то же начальное прибли-

³⁾ Так, запись ferrI, –878 обозначает, что при запуске расчета было задано ферримагнитное начальное приближение с $\mu(\text{Fe}_A^{3+}) = -8.0 \mu_B$, $\mu(\text{Fe}_B^{2+}) = 7.0 \mu_B$, $\mu(\text{Fe}_B^{3+}) = 8.0 \mu_B$.

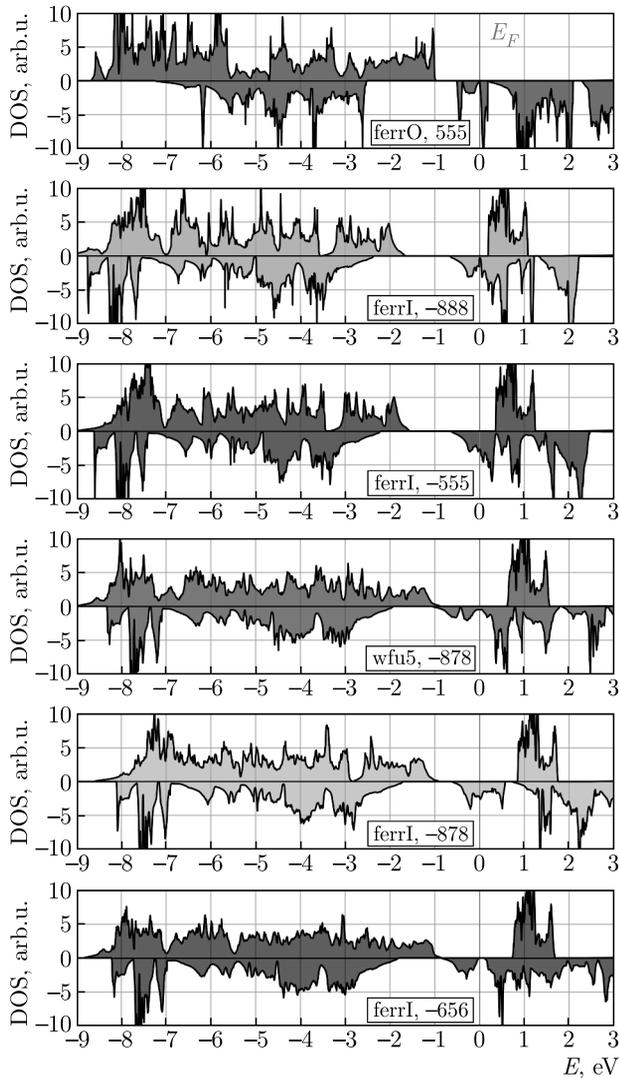


Рис. 3. Плотность электронных состояний со спином вверх (в положительном направлении оси ординат) и со спином вниз (с обратным знаком в отрицательном направлении оси ординат) для случаев, представленных в табл. 4 ($a = 8.475 \text{ \AA}$). Красной вертикальной линией отмечен уровень Ферми

жение $\text{ferrI}, -656$ может давать решения, которые распадаются на три случая. Два из них можно аппроксимировать двумя различными кривыми $E(V)$ с разницей в 17 мэВ/ф.у. между значениями полной энергии в минимумах (это верхняя и нижняя кривые на рис. 4), а третий случай — «выпавшая» точка с $a = 8.475 \text{ \AA}$. То, что решения, укладывающиеся на каждую из кривых, относятся к одному типу, видно по плавно меняющейся с изменением постоянной решетки плотности электронных состояний в рамках каждой серии (рис. 4, внизу). При этом решения с чуть большей полной энергией характеризуются

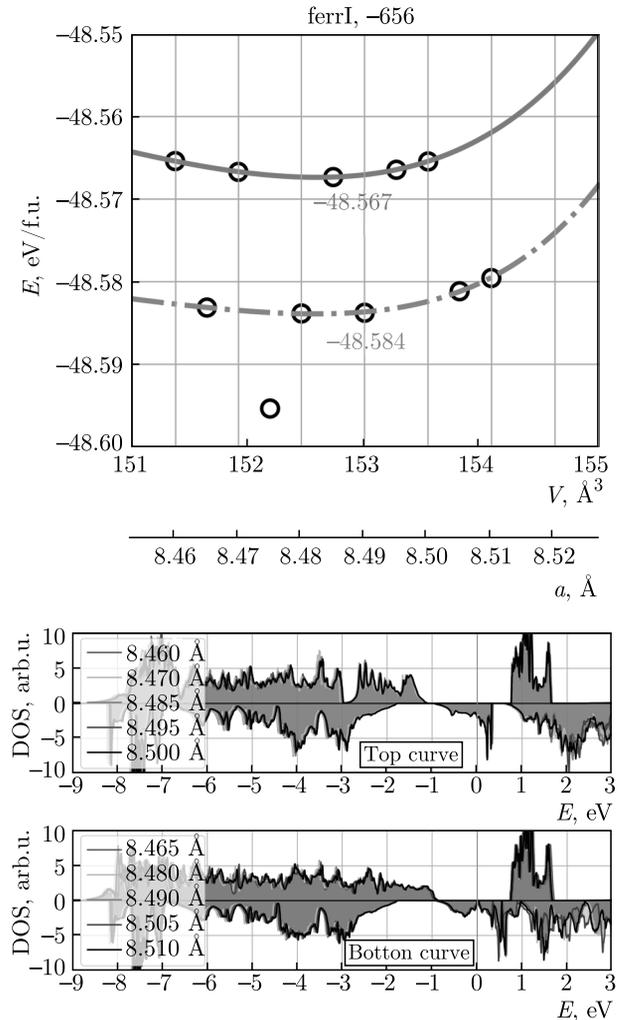


Рис. 4. Свойства решений, полученных с начальным приближением $\text{ferrI}, -656$: зависимость $E(V)$ — в верхней части рисунка, плотность электронных состояний для точек, укладывающихся на верхнюю и нижнюю кривые соответственно — внизу. Плотность электронных состояний для «выпавшей» точки (это случай $\text{ferrI}, -656$ с $a = 8.475 \text{ \AA}$) показана на рис. 3 внизу

ются полуметаллическим состоянием (верхняя кривая), решения с меньшей полной энергией демонстрируют псевдощелевое поведение (нижняя кривая), решение для выпавшей точки отличается запрещенной зоной (это тот самый случай $\text{ferrI}, -656$ при $a = 8.475 \text{ \AA}$ в табл. 4 и самый нижний график на рис. 3).

На рис. 5 представлены числа заполнения локализованных орбиталей d -состояний для каждого из шести катионов сверхячейки с 14 атомами для случаев с $a = 8.470 \text{ \AA}$, $a = 8.480 \text{ \AA}$ и $a = 8.475 \text{ \AA}$ с рис. 4. Видно, что все эти решения действительно

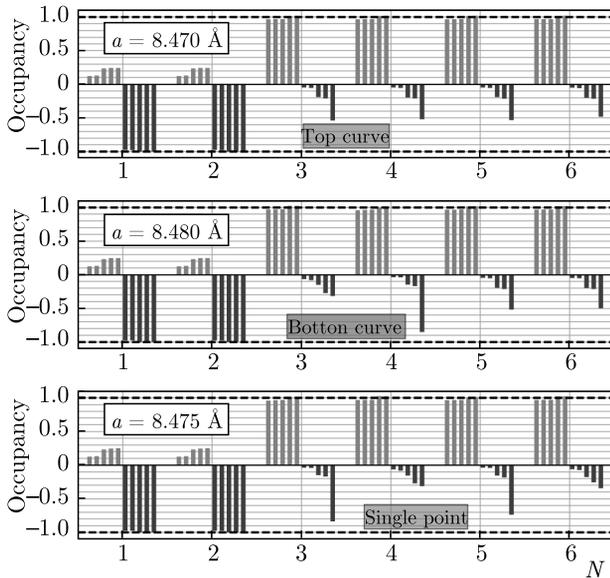


Рис. 5. Степень заселенности d -орбиталей со спином вверх (в положительном направлении оси ординат, выделена зеленым цветом) и со спином вниз (с обратным знаком в отрицательном направлении оси ординат, выделена синим цветом) для катионов А- и В-подрешеток с номерами $N = 1 - 2$ и $N = 3 - 6$ соответственно в сверхячейке с 14 атомами для случаев рис. 4

обладают ферромагнитным упорядочением: у катионов А-подрешетки (с номерами $N = 1, 2$) заполнены все состояния со спином вниз, а у катионов В-подрешетки (с номерами $N = 3 - 6$) — все состояния со спином вверх. Для случая с $a = 8.470 \text{ \AA}$ с верхней кривой на рис. 4 числа заполнения для одной из локализованных орбиталей у каждого В-катиона составляют 0.5. Для случая с $a = 8.480 \text{ \AA}$ с нижней кривой наблюдается состояние с заселенностью более 0.8 у одного катиона В-подрешетки ($N = 4$). Наконец, в случае с выпавшей точкой $a = 8.475 \text{ \AA}$, имеющей наименьшую полную энергию, локализованные состояния наблюдаются у двух В-катионов (это половина общего числа В-катионов), однако их числа заполнения немного отличаются (на 0.1).

В работе [26] был предложен метод поиска решений с наименьшей полной энергией в DFT+U. Его алгоритм заключается в последовательном использовании решений, полученных сначала без поправки, а затем с увеличением U_{eff} в качестве начальных приближений в расчетах с плавным увеличением U_{eff} . В работе была сделана попытка его применения в сверхячейке с 14 атомами с $a = 8.490 \text{ \AA}$ и $x = 0.2549$. На первой картинке рис. 6 показаны числа заполнения для случая с $U_{eff} = 0$, а на второй картинке сверху — решение, полученное с по-

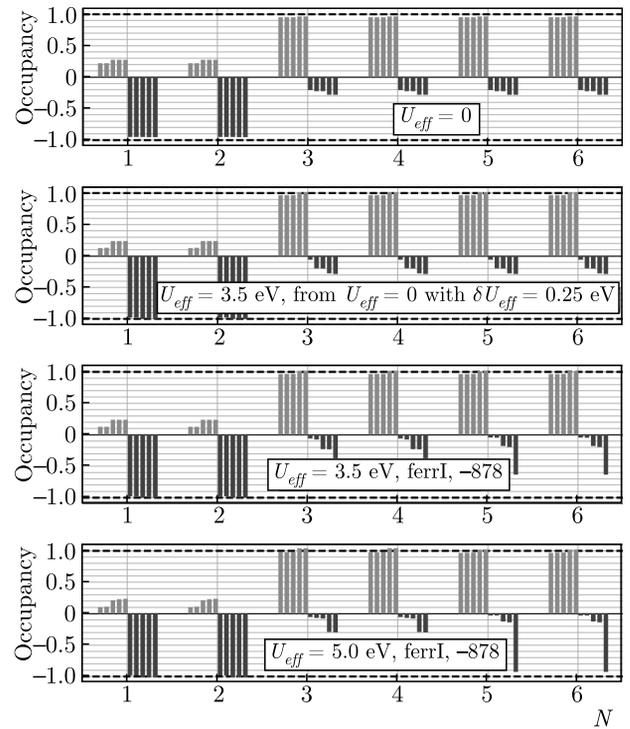


Рис. 6. Степень заселенности d -орбиталей для обсуждаемых случаев. Обозначения тождественны обозначениям рис. 5

мощью метода работы [26] с шагом $\delta U_{eff} = 0.25 \text{ эВ}$ при $U_{eff} = 3.5 \text{ эВ}$. Это решение на 0.25 эВ/f.u. выше решения, полученного при начальном приближении ferrI, -878 (третья картинка на рис. 6), что совпадает с разницей между полными энергиями решений с и без отличий В-катионов, представленными ранее. Из рис. 6 видно, что вычисления без учета сильных электронных корреляций не дают локализованных состояний у В-катионов со спином вниз. Их использование в качестве волновых функций и плотности при $U_{eff} = 0.25 \text{ эВ}$, и далее использование решений от $U_{eff} = 0.25 \text{ эВ}$ при $U_{eff} = 0.50 \text{ эВ}$, и далее, вплоть до $U_{eff} = 3.5 \text{ эВ}$, дает решения также без локализованных состояний. В то время как с другими начальными приближениями при $U_{eff} = 3.5 \text{ эВ}$ можно найти решения с более низкими значениями полной энергии. Эти решения отличаются локализованными состояниями со спином вниз у половины В-катионов. Однако числа заполнения этих локализованных орбиталей не равны в точности единице, а несколько ниже (0.65). Интересно отметить, что при тех же условиях при $U_{eff} = 5.0 \text{ эВ}$ получаются близкие к единице числа заполнения (рис. 6, самая нижняя картинка). Поэтому, вероятно, их использование в качестве начальных приближений для рас-

чета с $U_{eff} = 3.5$ эВ дает решения из области с более низкими полными энергиями (wf5, -878 на рис. 2). Однако, как будет обсуждаться далее, ширина запрещенной зоны, полученная при $U_{eff} = 5.0$ эВ, на порядок выше, чем при $U_{eff} = 3.5$ эВ (в то время как при $U_{eff} = 3.5$ эВ ширина запрещенной зоны ближе к ее экспериментальному порядку).

Подводя промежуточный итог, можно отметить, что рассматриваемая система обладает множеством локальных минимумов, найти некоторые из них позволяет задание различных начальных приближений к волновым функциям и плотности. При этом решения с наименьшими полными энергиями являются решения с отличиями октаэдрических катионов. При вычислении энергий образования дефектов кубической фазы магнетита разница порядка $0.02-0.03$ эВ/f.u. для величины E_0 (и, возможно, для величины E_V) между решениями, имеющими отличия октаэдрических катионов, по-видимому, вносит вклад в неточность, с которой эти энергии образования могут быть известны (порядка $0.16-0.24$ эВ при исследовании дефектов в сверхячейках с 8 f.u. (56 атомами)). Она кажется не столь существенной по сравнению с разницей в 0.25 эВ/f.u. между решениями с и без отличий В-катионов, дающей 2.0 эВ. Последняя может быть основной причиной появления отрицательных энергий образования дефектов.

Расчеты в сверхячейке с 56 атомами. Далее в статье, кроме особо оговоренных случаев, будут представлены результаты, полученные в сверхячейках с 56 атомами. В табл. 5 представлены результаты расчетов в сверхячейке с 56 атомами при фиксированной ионной конфигурации с $a = 8.490$ Å и $x = 0.2549$ и значении $U_{eff} = 3.5$ эВ. Рядом для сравнения представлены результаты, полученные ранее при аналогичных условиях в сверхячейке с 14 атомами (обозн. (14)).

При запуске расчетов в сверхячейке с 56 атомами, как и в случае с 14 атомами, задавались различные начальные приближения. Их задание осуществлялось с помощью начальных магнитных моментов катионов. При этом ферромагнитная начальная схема уже не рассматривалась, только ферримагнитная. Обозначения аналогичны обозначениям в случае с 14 атомами. Для начального приближения с ферримагнитным упорядочением рассматривались случаи с отличиями и без отличий В-катионов. В случае с 56 атомами начальные приближения без отличий В-катионов могут приводить (-555), а могут и не приводить (-555 (isym2), -888 (isym2)) к решениям с отличиями В-катионов. Это объясняется тем, что в случаях (-555 (isym2), -888 (isym2)) на

Таблица 5. Вычисленные значения полной энергии E (эВ/f.u.), внешнего давления p (кбар) и разницы между магнитными моментами Fe_B^{3+} и Fe_B^{2+} , $\delta\mu$ (μ_B), для случая с $a = 8.490$ Å, $x = 0.2549$ при $U_{eff} = 3.5$ эВ

	E	p	$\delta\mu$
Без отличий В-катионов			
-555 (isym2)	-48.313	-20.7	0.05
-888 (isym2)	-48.313	-20.7	0.05
-555	-48.597	-7.9	0.37
-888	не сошлась		
-555 (14)	-48.561	-7.8	0.30
-888 (14)	-48.313	-20.0	0.00
С отличиями В-катионов			
Начальная схема Вервея (mv)			
-545	-48.571	-7.6	0.36
-878	-48.564	-10.5	0.17
-545 (14)	-48.549	-9.7	0.15
-878 (14)	-48.564	-10.2	0.15
Случайная начальная схема (m2)			
-545	-48.605	-6.6	0.44
-878	-48.605	-7.2	0.46

волновые функции и электронную плотность были наложены дополнительные требования симметрии, определяемые симметрией решетки. Как ранее отмечалось в работе [5], в таком случае решения имеют более высокую полную энергию, чем решения, не обладающие симметрией. Разница в полных энергиях решений, полученных в случаях -555 (и обладающих отличиями В-катионов) и -555 (isym2) (и не обладающих такими отличиями), в данной работе составляет 0.28 эВ/f.u., что сравнимо с разницей, полученной при вычислениях в сверхячейке с 14 атомами (0.25 эВ/f.u.). По представленным на рис. 7 числам заполнения локализованных орбиталей видно, что для решений, обладающих симметрией (см. -888 (isym2)), локализованных состояний со спином вниз у В-катионов не наблюдается. Это выражается также в том, что разница вычисленных магнитных моментов катионов в табл. 5 близка к нулю. Видно, что в случае с 14 атомами такой локальный минимум также был найден (-888 (14)).

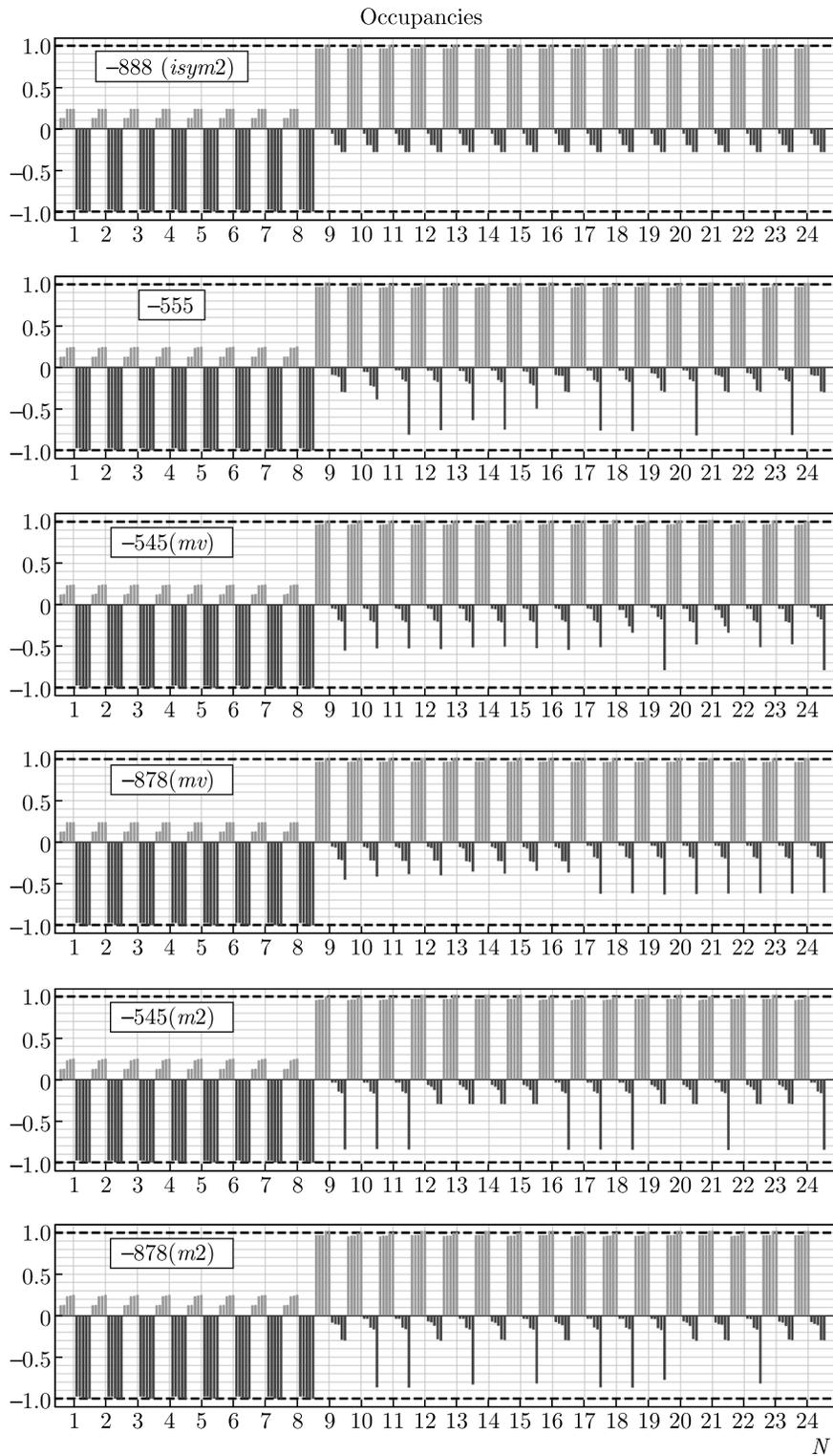


Рис. 7. Степень заселенности d -орбиталей со спином вверх (в положительном направлении оси ординат) и со спином вниз (с обратным знаком в отрицательном направлении оси ординат) для катионов А- и В-подрешеток с номерами $N_A = 1 - 8$ и $N_B = 9 - 24$ соответственно в сверхячейке с 56 атомами для случаев табл. 5. Из рассмотренных начальных схем только $-545 (m2)$ привела к решению со схемой Вервея

Проведенный ранее анализ решения, обладающего наименьшей полной энергией среди найденных в сверхячейке с 14 атомами, показал, что оно характеризуется локализованными состояниями у половины В-катионов. Показалось естественным предположить, что этим будут отличаться и решения с наименьшими полными энергиями в сверхячейке с 56 атомами. В таком случае в качестве начальных приближений естественно было бы задать приближения, учитывающие разницу В-катионов (половину В-катионов с большим начальным моментом, половину — с меньшим). Однако при задании начальных приближений с отличиями В-катионов в сверхячейке с 56 атомами возникают существенные трудности. Дело в том, что в сверхячейке с 14 атомами четыре В-катиона. Их можно распределить по двум группам с меньшим и большим начальными моментами шестью способами. При этом все шесть способов приводят к шести решениям с неотличимой в рамках погрешности полной энергии. Решения отличаются только схемами распределения двух- и трехвалентных катионов по узлам В-подрешетки. Однако в сверхячейке с 14 атомами все эти схемы, при условии нахождения минимума с четким разделением на две группы, эквивалентны и представляют схему, известную как схема Вервея.

Понятие «схема Вервея» возникает при обсуждении зарядового упорядочения в магнетите, т. е. распределения двух- и трехвалентных катионов по узлам В-подрешетки (или локализации заряда). В схеме Вервея, рассматриваемой, например, в элементарной ячейке кубической фазы магнетита, плоскости, перпендикулярные оси [001] и содержащие цепочки катионов Fe_B^{2+} , чередуются вдоль этой оси с плоскостями, также перпендикулярными [001] и содержащими цепочки катионов Fe_B^{3+} (см. решение со схемой Вервея на рис. 11).

Трудность в сверхячейке с 56 атомами заключается в том, что в ней не четыре, а шестнадцать узлов В-подрешетки. Распределить по ним двух- и трехвалентные катионы можно большим числом способов, причем далеко не все из них эквивалентны схеме Вервея. Такие начальные приближения, отличающиеся не только начальным магнитным упорядочением и значением начальных магнитных моментов катионов, а еще и схемой начального распределения катионов разной валентности по В-узлам, могут давать новые локальные минимумы в сверхячейках с 56 атомами. Поскольку вычисления в сверхячейках с 56 атомами более ресурсоемки, в данной работе было рассмотрено два случая: (1) начальное зарядовое упорядочение в виде схемы Вервея (обозн. mv)

и (2) случайная начальная схема зарядового упорядочения (обозн. m2), показанная на рис. 1.

Из табл. 5 видно, что решения с наиболее низкими полными энергиями были получены с использованием начальной случайной схемы m2. Если анализировать представленные для случаев табл. 5 числа заполнения локализованных орбиталей (рис. 7), можно заметить, что решения с наименьшей полной энергией (–545 (m2) и –878 (m2)) отличаются от других решений следующими особенностями: 1) у них наблюдаются локализованные *d*-состояния со спином вниз у В-катионов (в отличие от случая –888 (isym2), в котором их нет), 2) числа их заполнения стремятся к наибольшим возможным значениям (в отличие от случая –878 (mv)), 3) катионов с такими орбиталями — половина от общего числа В-узлов (в отличие от случая с –545 (mv)), 4) и в рамках этой половины числа заполнения имеют практически одинаковые значения (в отличие от случая –555). Из табл. 5 видно также, что решения –545 (m2) и –878 (m2) не отличаются полной энергией (в рамках погрешности). Однако на рис. 7 их отличия видны. Дело в том, что в случае –545 (m2) решение характеризуется схемой зарядового упорядочения Вервея (рис. 11), а в случае –878 (m2) — нет. По-видимому, для решения со схемой Вервея характерны одинаковые значения чисел заполнения локализованных орбиталей у половины В-катионов (в отличие от решения с –878 (m2), где среди них есть небольшие отличия). Интересно отметить, что к схеме Вервея не привели и случаи с начальной схемой Вервея (–545 (mv) и –878 (mv)). При этом характерные отличия в полных энергиях между схемами с отличиями В-катионов составляют порядка 0.03 эВ/ф.у., что согласуется с данными, полученными в сверхячейках с 14 атомами. Ясно, однако, что решений типа тех, которые в сверхячейке с 56 атомами дали случаи –545 (mv) и –878 (mv), в сверхячейке с 14 атомами из-за ее геометрии получить нельзя. Для случая с 56 атомами исследовалась также начальная схема –545 (m1), которая отличалась от схемы –545 (m2) перестановкой двух начальных магнитных моментов катионов. Полученное в этом случае решение на 4 мэВ выше, чем в случае –545 (m2) и не характеризуется ни зарядовым, ни орбитальным упорядочением.

Результаты оптимизации геометрии сверхячейки с сохранением симметрии кубической фазы для отдельных случаев представлены в табл. 6. При этой процедуре варьироваться мог только объем сверхячейки. В качестве начальной ионной конфигурации использовалась описанная выше, с $a =$

Таблица 6. Вычисленные значения полной энергии E (эВ/ф.у.), равновесной постоянной решетки a_0 (Å) и разницы между магнитными моментами Fe_B^{3+} и Fe_B^{2+} , $\delta\mu$ (μ_B), для равновесного случая с $x = 0.2549$

	E	a_0	$\delta\mu$
Без отличий В-катионов			
-888 (<i>isym2</i>)	-48.319	8.456	0.01
С отличиями В-катионов			
Случайная начальная схема (m2)			
-545	-48.606	8.479	0.43
-878	-48.606	8.478	0.44

= 8.490 Å, $x = 0.2549$. Из сравнения данных в табл. 6 и табл. 5 видно, что свойства равновесных решений очень близки к тем, которые были получены ранее для неравновесной конфигурации с $a = 8.490$ Å, $x = 0.2549$ при тех же начальных приближениях. Полученные при начальных приближениях -545 (m2) и -878 (m2) решения не отличаются в рамках погрешности, а приближение без отличий В-катионов ferrI, -888 дает другую оптимизированную постоянную решетки и более высокую (на 0.29 эВ/ф.у.) полную энергию. Равновесная постоянная решетки в случае -545 (m1) составляет 8.477 Å; полная энергия для этого случая -48.598 эВ, что на 7 мэВ выше, чем для равновесного случая -545 (m2), который дал схему Вервея.

3.2.2. Подбор U_{eff}

$U_{eff} = 0$. В этом предельном случае, без учета сильных электронных корреляций, при $x = 0.2549$ вычисленное значение равновесной постоянной решетки составляет 8.393 Å, что в точности соответствует экспериментальному значению для кубической фазы магнетита (табл. 2). При этом ферримагнитные начальные схемы с и без отличий В-катионов дают одно и то же ферримагнитное решение без отличий В-катионов. Начальное приближение, не включающее отличия В-катионов, сходится к этому решению быстрее. Модель с $U_{eff} = 0$ не предсказывает запрещенной зоны для кубической фазы магнетита. Уровень Ферми (рис. 8) пересекает состояния В-катионов со спином вниз. На рис. 8 отчетливо видно расщепление d -состояний в кристаллическом поле на t_{2g} (d_{xy}, d_{xz}, d_{yz}) и e_g ($d_{z^2-r^2}, d_{x^2-y^2}$) состояния, причем в тетраэдрическом окружении ниже по энергии оказываются e_g состояния, а в октаэдричес-

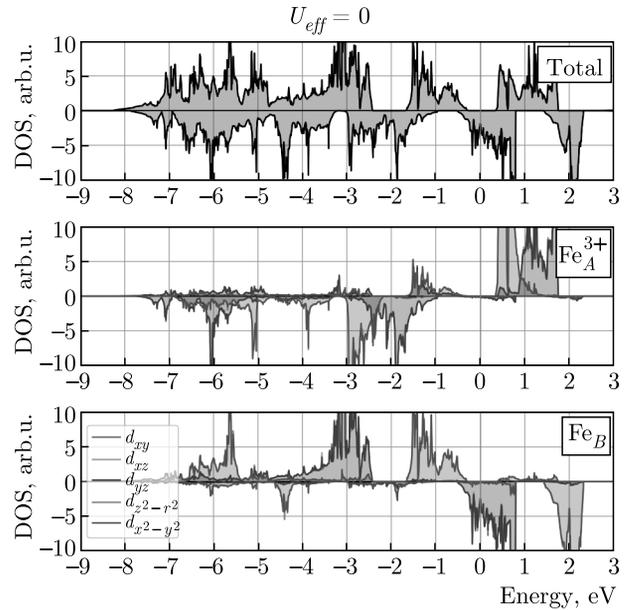


Рис. 8. Полная и спроектированные на d -состояния отдельных катионов А- и В-подрешетки плотности электронных состояний для равновесного случая при $U_{eff} = 0$ в сверхячейке с 56 атомами

Таблица 7. Вычисленные значения магнитных моментов катионов μ (μ_B) и равновесной постоянной решетки a_0 Å для случаев с разными U_{eff} (эВ)

U_{eff}	μ			a_0
	Fe_A^{3+}	Fe_B^{2+}	Fe_B^{3+}	
0.0	-3.48	3.56		8.393
3.5	-4.02	3.68	4.10	8.479
5.0	-4.16	3.72	4.24	8.487

ком окружении - t_{2g} , что согласуется с теоретическими предсказаниями [51].

$U_{eff} = 5.0$ эВ. На рис. 9 показан другой предельный случай, с достаточно большим значением поправки, $U_{eff} = 5.0$ эВ. Видна предсказываемая моделью запрещенная зона, ширина которой, однако, почти на порядок превосходит наблюдаемую в экспериментах с кубической фазой ширину псевдощели. При $U_{eff} = 5.0$ эВ в сверхячейке с 14 атомами чувствительности к конкретным значениям начальных магнитных моментов для ферримагнитной начальной схемы с отличиями В-катионов не наблюдается, а схема без отличий В-катионов дает более высокую полную энергию. В отличие от случая с $U_{eff} = 0$, где отличий В-катионов не наблю-

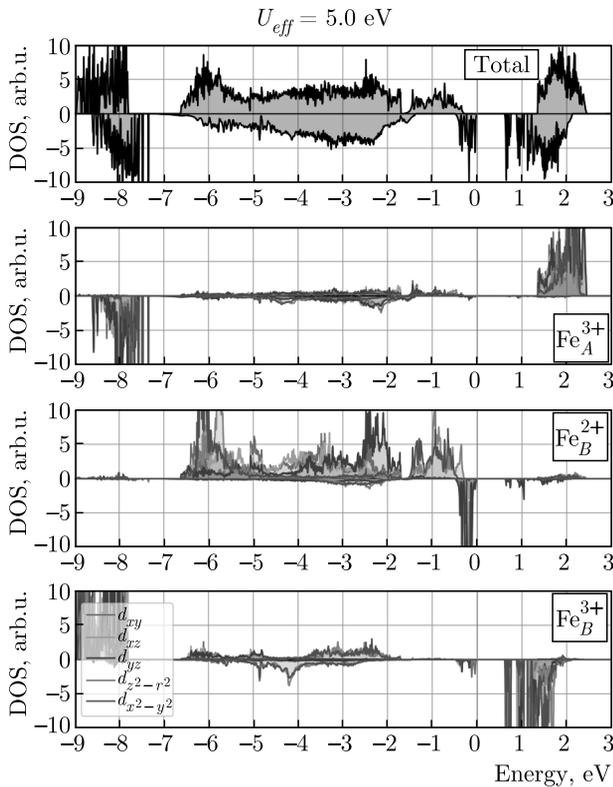


Рис. 9. Полная и спроектированные на d -состояния отдельных катионов А- и В-подрешетки плотности электронных состояний для равновесного случая при $U_{eff} = 5.0$ эВ в сверхячейке с 56 атомами

дается, при $U_{eff} = 5.0$ эВ у половины В-катионов наблюдаются локализованные состояния со спином вниз. На плотности состояний В-катионов с меньшим магнитным моментом (и потому интерпретированных и обозначенных как Fe_B^{2+}) вблизи уровня Ферми можно заметить характерный ассоциированный с ними пик (на рис. 9 показан случай для одного из восьми Fe_B^{2+}), которого нет у Fe_B^{3+} . Различия в магнитных моментах катионов Fe_B^{2+} и Fe_B^{3+} при $U_{eff} = 5.0$ эВ выше, чем при $U_{eff} = 3.5$ эВ и составляют $0.52 \mu_B$ (табл. 7). Однако при $U_{eff} = 5.0$ эВ случайно заданная начальная схема -545 (m2), давшая при $U_{eff} = 3.5$ эВ решение со схемой Вервея, схему Вервея не дала. Вычисленные значения равновесной постоянной решетки и магнитных моментов катионов при $U_{eff} = 5.0$ эВ оказываются выше, чем при $U_{eff} = 0$ и $U_{eff} = 3.5$ эВ (табл. 7).

$U_{eff} = 3.5$ эВ. В равновесном случае при $U_{eff} = 3.5$ эВ, полученном с -545 (m2), ширина запрещенной зоны на порядок меньше, чем в случае $U_{eff} = 5.0$ эВ (рис. 10). В плотности состояний со спином вниз, как и в случае с $U_{eff} = 5.0$ эВ, ниже уровня Ферми есть пик, связанный с t_{2g} состояни-

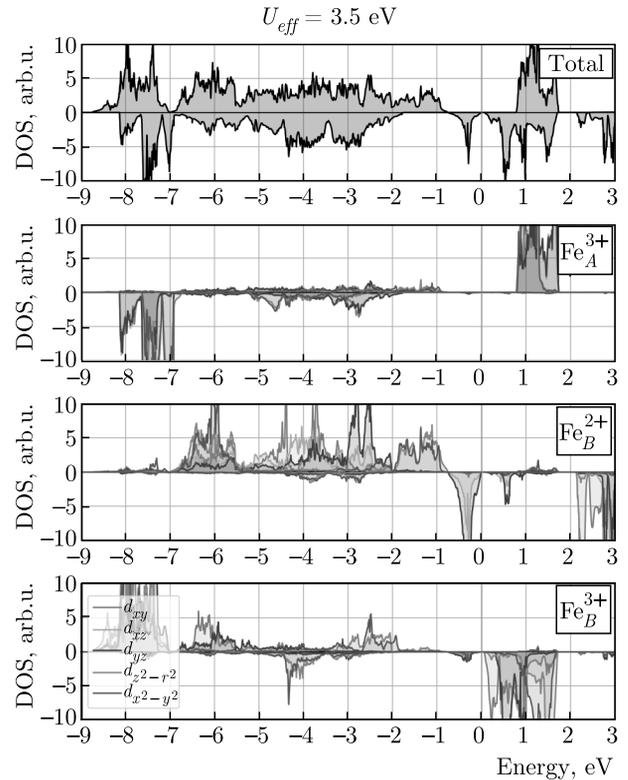


Рис. 10. Полная и спроектированные на d -состояния отдельных катионов А- и В-подрешетки плотности электронных состояний для равновесного случая при $U_{eff} = 3.5$ эВ в сверхячейке с 56 атомами

ями Fe_B^{2+} . Распределение спиновой плотности для состояний из интервала энергий, соответствующих этому пику, показано на рис. 11. Из рис. 11 видно, что это решение характеризуется также орбитальным упорядочением. При этом характер расположения орбиталей кажется соответствующим искажению решетки ($x = 0.2549$). Интересно отметить, что при $x = 0.2500$ для схемы Вервея наблюдается орбитальное упорядочение без искажений, и орбитали Fe_B^{2+} выстраиваются в идеальные цепочки; однако, как уже упоминалось, случай с $x = 0.2500$ — выше по энергии. В случае сверхячейки с 14 атомами орбитали также выстраиваются в идеальные цепочки (рис. 13); но в этом случае такой эффект, по видимому, может быть обусловлен размерным эффектом сверхячейки, включающим, возможно, артефактное взаимодействие атомов сверхячейки с их изображениями в ее образах. Парциальная плотность локализованных состояний для равновесного случая -878 (m2) показана на рис. 12; можно заметить, что двух- и трехвалентные катионы в цепочках чередуются, образуя отличный от -545 (m2) характер упорядочений.

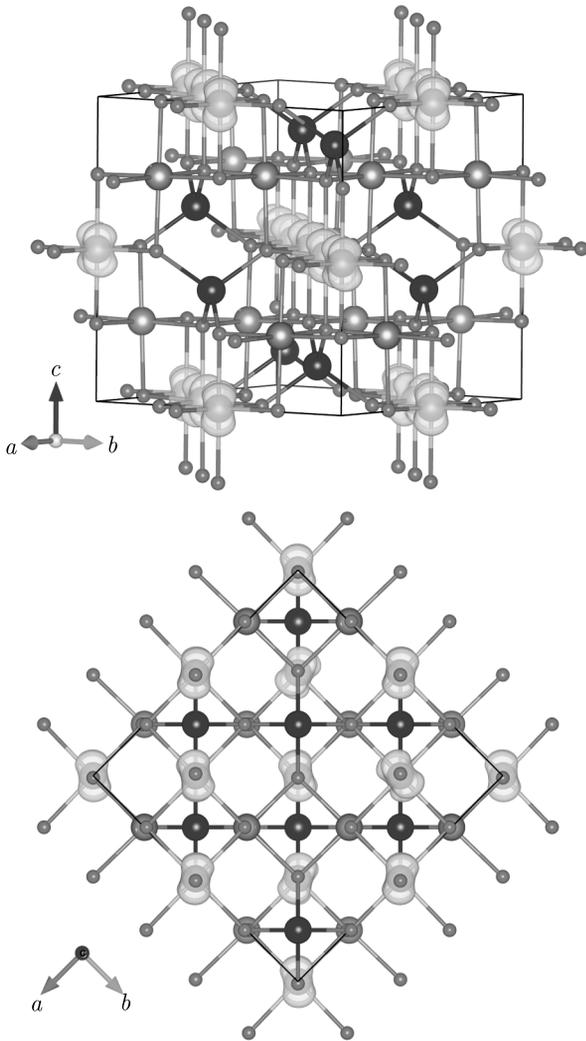


Рис. 11. Зарядовое и орбитальное упорядочения для равновесного случая -545 (m_2) при $U_{eff} = 3.5$ эВ в сверхячейке с 56 атомами. На нижней картинке показан вид сверху

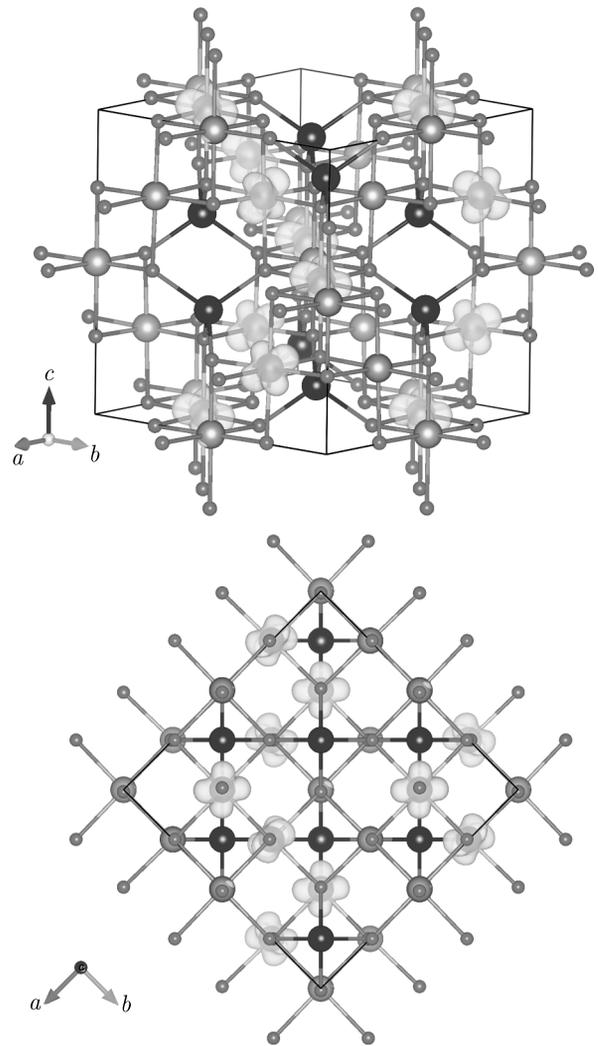


Рис. 12. Парциальная плотность локализованных состояний для равновесного случая -878 (m_2) при $U_{eff} = 3.5$ эВ в сверхячейке с 56 атомами

$U_{eff} = 3.2 \div 3.7$ эВ. Для проверки того, насколько сильно равновесная постоянная решетки и ширина запрещенной зоны могут измениться при вариации значения U_{eff} в небольшом интервале, были найдены равновесные решения при U_{eff} от 3.2 эВ до 3.7 эВ. Для этого, с использованием волновых функций и плотности равновесного решения, полученного при $U_{eff} = 3.5$ эВ с -545 (m_2), в качестве начальных приближений, проводился расчет сначала с $U_{eff} = 3.6$ эВ, а затем, с использованием полученного при этом U_{eff} решения, — для $U_{eff} = 3.7$ эВ, и аналогично — в сторону уменьшения U_{eff} . Все полученные таким образом решения также обладали схемой Вервея и орбитальным упорядочением. С увеличением U_{eff} равновесная постоянная решетки a_0

и ширина запрещенной зоны кубической фазы E_g увеличиваются (рис. 14). Экспериментальный порядок наблюдаемой для кубической фазы псевдощели (100 мэВ [41], 70 мэВ [39]) может быть получен при U_{eff} в диапазоне от 3.55 эВ до 3.65 эВ. Судя по характеру зависимости $E_g(U_{eff})$, можно также предположить, что при U_{eff} менее 3.0 эВ модель уже не будет предсказывать запрещенную зону для кубической фазы магнетита. Стоит отметить, что не представленные здесь расчеты в сверхячейке с 14 атомами при U_{eff} менее 3.0 эВ при отсутствии запрещенной зоны дают небольшие (видимо, недостаточные для открытия запрещенной зоны) отличия В-катионов. В данной работе решено было оставить значение $U_{eff} = 3.5$ эВ, поскольку характер полу-

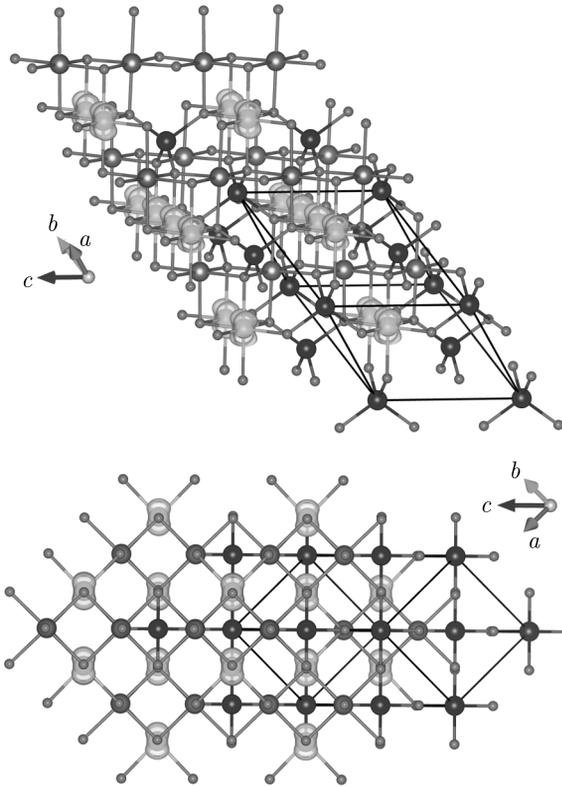


Рис. 13. Зарядовое и орбитальное упорядочения для равновесного случая при $U_{eff} = 3.5$ эВ в сверхячейке с 14 атомами. Ребра расчетной сверхячейки показаны черными сплошными линиями. Видна более четкая ориентация орбиталей по сравнению со случаем 56 атомов, что, возможно, является проявлением размерного эффекта

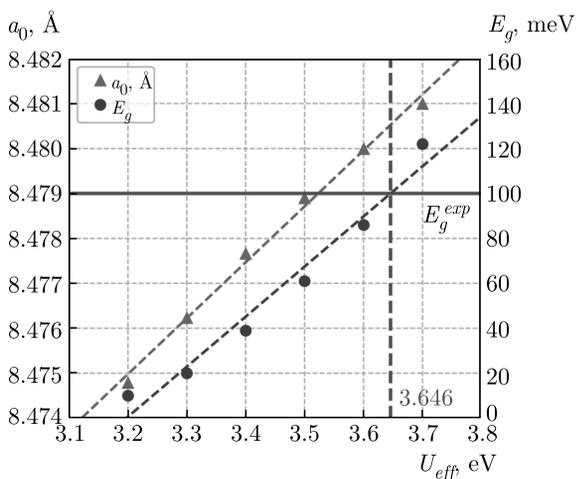


Рис. 14. Зависимость равновесной постоянной решетки a_0 и ширины запрещенной зоны кубической фазы E_g от значения U_{eff} в диапазоне 3.2–3.7 эВ. Экспериментальный порядок ширины запрещенной зоны достигается при $U_{eff} = 3.646$ эВ

ченных с ним решений не сильно отличается от случаев 3.55 эВ до 3.65 эВ. Значение ширины запрещенной зоны модели при $U_{eff} = 3.5$ эВ составляет 60 мэВ.

3.2.3. Релаксация атомов

При получении свойств дефектов кубической фазы магнетита планировалось учесть эффект релаксации их локального окружения. В работах [10, 29] для этого в сверхячейке с дефектом оптимизировались координаты атомов при фиксированной равновесной постоянной решетки. Принимая во внимание наблюдаемый в магнетите переход Вервея и то, что модель DFT+U способна описывать низкотемпературное состояние магнетита, можно предположить, что при оптимизации координат атомов в DFT+U даже система без дефектов перейдет в состояние с более низкой полной энергией, чем полученное равновесное состояние кубической фазы. Это произойдет потому, что наложенные на ионную конфигурацию условия симметрии кубической фазы будут сняты.

Действительно, полученные в случае –545 (m2) данные показали, что оптимизация координат атомов в сверхячейке с 56 атомами из равновесного состояния кубической фазы с фиксированным значением постоянной решетки приводит к понижению полной энергии на 106 эВ/f.u. (0.85 эВ) при повышении внешнего давления на 2.3 кбар. При этом происходит искажение решетки с понижением ее симметрии, а ширина запрещенной зоны увеличивается от 60 мэВ до релаксации до 588 мэВ после (рис. 20). Характер зарядового упорядочения в случае –545 (m2) при этом не изменился (рис. 18), но характер орбитального упорядочения стал другим (рис. 15). По расположению орбиталей (рис. 15) можно предположить, что при релаксации атомов они развернулись так, чтобы область их перекрытия в цепочке Fe_B^{2+} была меньше по сравнению с тем, что было до релаксации (рис. 11); это могло способствовать увеличению ширины запрещенной зоны. После релаксации атомов разница между зарядами двух- и трехвалентных В-катионов немного уменьшается (рис. 19). Релаксация атомов в случаях –878 (m2) и –545 (m1) дает понижение полной энергии на 112 и 129 мэВ/f.u. соответственно; запрещенная зона при релаксации увеличивается на порядок; зарядового и орбитального упорядочений в релаксированных конфигурациях нет.

Симметрия решетки после релаксации атомов не контролировалась. Не исключено, что для релак-

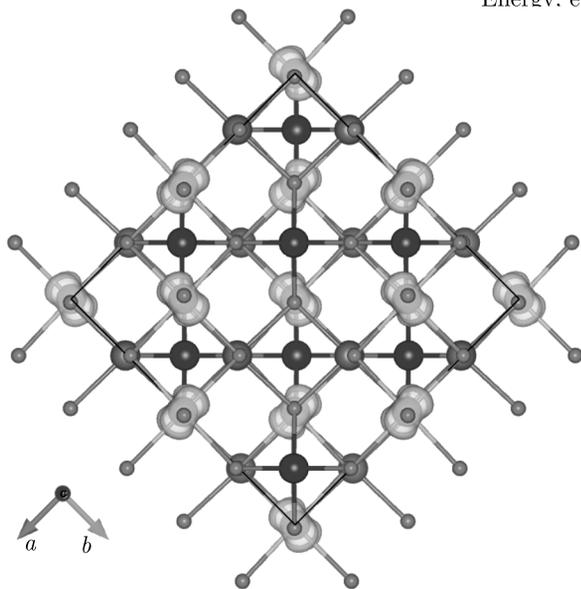
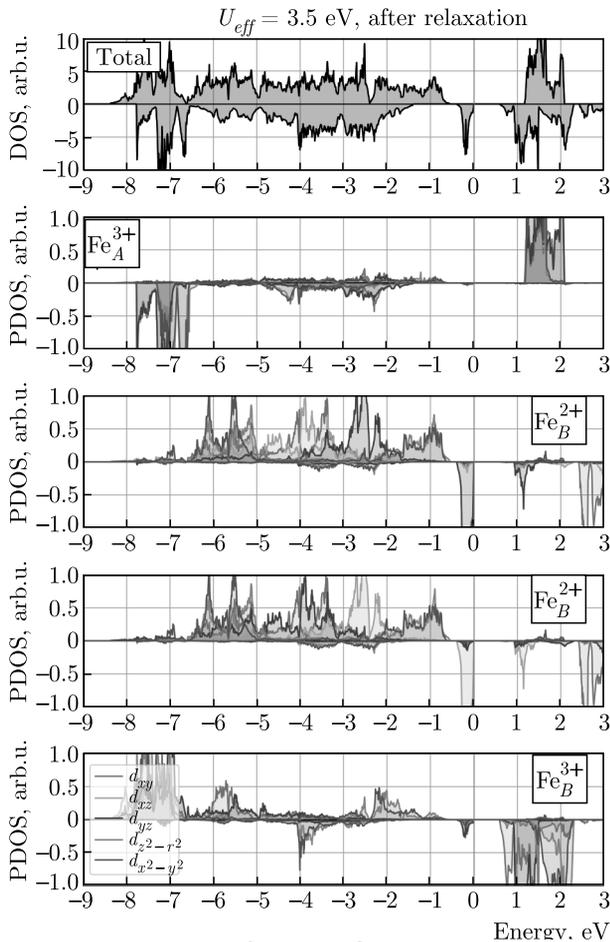


Рис. 15. Плотность электронных состояний и орбитальное упорядочение после релаксации атомов. При сравнении с рис. 11 (внизу) видна переориентация орбиталей после релаксации и связанное с ним изменение спроектированной плотности состояний; характер зарядового упорядочения соответствует показанному на рис. 11 (вверху)

сированной конфигурации мог быть найден также только локальный минимум. Кажется существенным только то, что при релаксации атомов найдена конфигурация с меньшей полной энергией, чем до релаксации. Возможно, в задаче вычисления энергии образования точечных дефектов этот дополнительный эффект релаксации атомов, связанный не с релаксацией дефектного окружения, а со стремлением структуры кубической фазы перейти в низкотемпературную, — еще один фактор, способствующий получению неадекватных энергий образования дефектов кубической фазы магнетита. При исследовании дефектов в структуре низкотемпературной фазы такого эффекта, казалось бы, возникнуть не должно. Однако вычисления со сверхячейками, отвечающими структуре низкотемпературной фазы, включающими 224 атома, — довольно ресурсоемки, и получение основного состояния в них при данном U_{eff} с учетом чувствительности результатов к параметрам расчета — непростая задача. Другой путь — создание дефектной конфигурации после релаксации атомов в структуре кубической фазы. Однако, как будет показано ниже, в этом случае дефектная конфигурация может прийти к минимуму с более высокой полной энергией, чем в случае, когда дефект был создан в сверхячейке без релаксации атомов.

3.3. Свойства вакансий магнетита

3.3.1. Энергии образования

Дефекты создавались в узлах, выделенных синим (V_A) и голубым (V_B) полиэдрами на рис. 1. Рассматривалось два случая. В первом из них катион удалялся до, а во втором — после релаксации атомов в бездефектной конфигурации. Затем в том же предположении о начальных магнитных моментах, что и для бездефектного массива (-545 (m₂)), за исключением магнитного момента удаленного катиона, проводился расчет с и без (обозн. как статический расчет) оптимизации координат атомов дефектной сверхячейки. В табл. 8 и табл. 9 приведены расчетные значения полных энергий дефектных и бездефектных конфигураций, а также вычисленные по формуле (1) значения энергий образования дефектов.

Интересно отметить, что в рамках подхода с уточненными параметрами расчета отрицательных энергий образования дефектов нет. Эффект релаксации локального окружения дефекта оказывается важен. Действительно, в статических расчетах, без оптимизации координат атомов дефектной конфи-

Таблица 8. Энергии образования А- и В-вакансий магнетита при $U_{eff} = 3.5$ эВ. Начальная конфигурация без релаксации атомов

Defect	E_V	E_0	E_{Fe}	E_V^F
Статический расчет				
V_A	-378.558	-388.847	-5.570	4.72
V_B	-379.734			3.54
Расчет с релаксацией атомов в сверхячейке с дефектом				
V_A	-380.779	-388.847	-5.570	2.50
V_B	-382.017			1.26
V_B^*	-381.836			1.44

* Был удален Fe_B^{3+} .

Таблица 9. Энергия образования В-вакансии магнетита при $U_{eff} = 3.5$ эВ. Начальная конфигурация с релаксацией атомов

Defect	E_V	E_0	E_{Fe}	E_V^F
Статический расчет				
V_B	-380.205	-389.689	-5.570	3.91
Расчет с релаксацией атомов в сверхячейке с дефектом				
V_B	-381.708	-389.689	-5.570	2.41

гурации, энергии образования вакансий оказываются завышенными примерно в два раза. При создании дефекта после релаксации атомов в бездефектной конфигурации энергия образования В-вакансии оказывается выше ($E_{V_B}^F = 2.41$ эВ), чем в том случае, когда вакансия создавалась в бездефектной конфигурации до релаксации атомов ($E_{V_B}^F = 1.26$ эВ), поскольку найденное состояние дефектной конфигурации в этом случае обладает более высокой полной энергией. Этот результат можно сравнить только с результатом $E_{V_B}^F = 2.30$ эВ работы [6] (табл. 1), в которой проводилась полная оптимизация решетки в сверхячейках с 56 атомами при $U = 4.5$ эВ и $J = 0.89$ эВ.

В случае, когда для создания вакансии атом удален из равновесной бездефектной конфигурации без релаксации атомов, а затем проводилась релаксация атомов в сверхячейке с дефектом, в данной работе были получены энергии образования также при $U_{eff} = 0.0$ и $U_{eff} = 5.0$ эВ. Без учета силь-

ных электронных корреляций полученные значения энергий образования А- и В-вакансий составили 2.89 эВ и 1.02 эВ соответственно, что согласуется с данными работы [29], полученными также без поправки Хаббарда (табл. 1). При $U_{eff} = 5.0$ эВ вычисленные значения энергий образования А- и В-вакансий равны 2.27 эВ и 1.46 эВ соответственно, что очень похоже на данные, полученные в данной работе при $U_{eff} = 3.5$ эВ (табл. 8).

Полученные при $U_{eff} = 3.5$ эВ с использованием начальных приближений -545 (m2) и -878 (m2) энергии образования дефектов отличаются не более чем на 0.03 эВ/f.u. и 0.09 эВ/f.u. для расчетов с и без оптимизации координат атомов соответственно. Если задавать начальные магнитные моменты катионов такими, какие были получены в результате вычислений для бездефектной конфигурации (за исключением магнитного момента удаленного катиона), то большинство задач не сходится. По-видимому, такие малые значения ($(3.72 - 4.12) \mu_B$) начальных магнитных моментов не подходят для алгоритма расчета.

Можно было бы предположить, что при наличии зарядового упорядочения в модели кубической фазы могло бы иметь значение то, какой катион был удален при создании вакансии в октаэдрической подрешетке, Fe_B^{2+} или Fe_B^{3+} . В данной работе были сделаны попытки провести расчет дефектных конфигураций с начальными магнитными моментами, соответствующими случаям, когда удален двух- или трехвалентный В-катион. Различие в вычисленных полных энергиях между этими случаями при $U_{eff} = 3.5$ эВ составляет 23 мэВ/f.u. (табл. 8, случай V_B^*), что сравнимо с неточностью, которую можно получить при задании различных начальных магнитных моментов в бездефектной сверхячейке. Поэтому из полученных данных, вероятно, нельзя сделать вывод о разнице в энергиях образования между случаями, когда удален Fe_B^{2+} или Fe_B^{3+} .

При $U_{eff} = 3.5$ эВ разница в энергиях образования вакансий в тетраэдрической и октаэдрической подрешетках составляет 1.16 ± 0.20 эВ, что согласуется с данными работ, выполненных ранее в рамках DFT+U (табл. 1).

3.3.2. Локальное окружение дефекта

Для случаев, в которых для энергий образования А- и В-вакансий были получены значения 2.50 эВ и 1.26 эВ соответственно (табл. 8), рассматривались изменения локального окружения дефекта. Оптимизированные конфигурации с А- и В-вакансиями

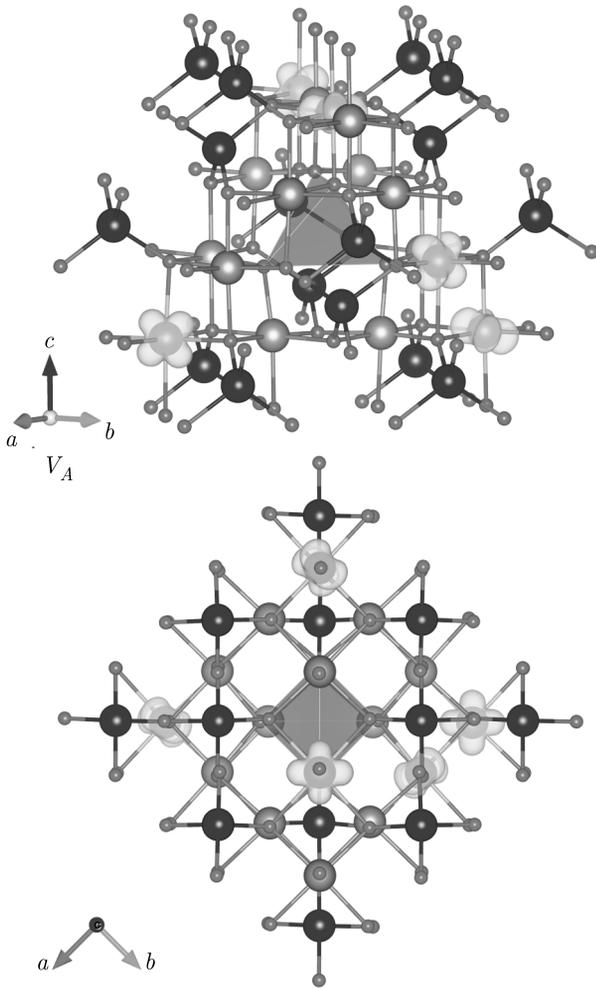


Рис. 16. Локальное окружение А-вакансии магнетита после релаксации в случае, когда дефект создавался в равновесной конфигурации кубической фазы без предварительной релаксации атомов в ней

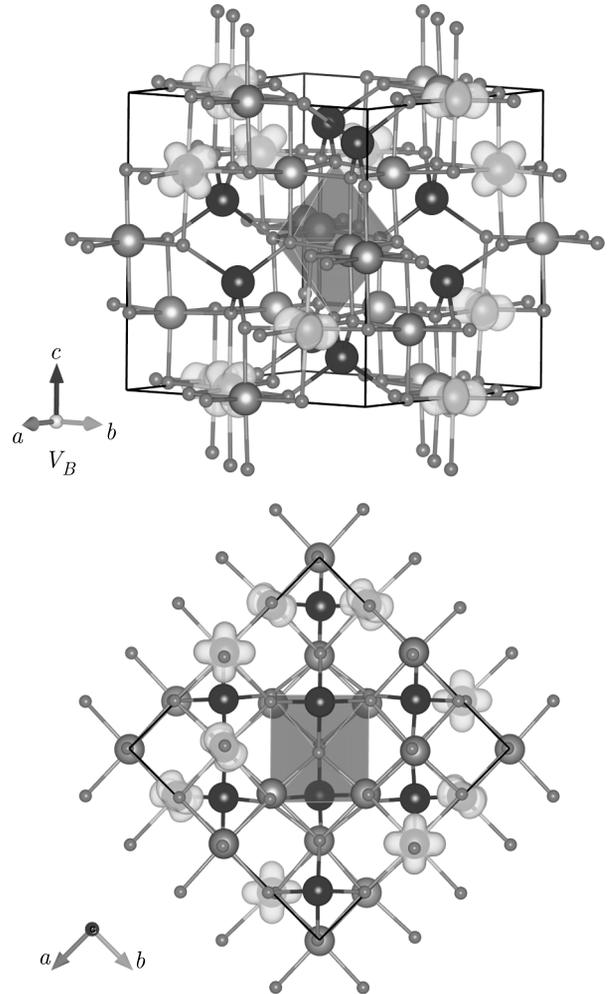


Рис. 17. Локальное окружение В-вакансии магнетита после релаксации в случае, когда дефект создавался в равновесной конфигурации кубической фазы без предварительной релаксации атомов в ней

показаны на рис. 16 и рис. 17 соответственно. Видно, что в дефектных сверхячейках зарядовое и орбитальное упорядочение нарушаются, а большинство двухвалентных катионов располагается как можно дальше от центра вакансии.

Полученная при $U_{eff} = 3.5$ эВ равновесная кубическая фаза характеризуется длинами связей $l_{Fe_A-O} = 1.908 \text{ \AA}$ и $l_{Fe_B-O} = 2.079 \text{ \AA}$ при $a_0 = 8.479 \text{ \AA}$ и $x = 0.2549$ (экспериментальные данные дают $l_{Fe_A-O} = 1.889 \text{ \AA}$, $l_{Fe_B-O} = 2.058 \text{ \AA}$ при $a_0 = 8.394 \text{ \AA}$ и $x = 0.2549$ [52]). Образование вакансий в А- и В-подрешетках характеризуется в основном укорочением длины связи Fe_B-O в первой координационной сфере вакансии, причем анионы отдаляются, а катионы становятся ближе к центру вакансии. Такое укорочение $l_{Fe_B-O_1}$ составляет 6.4% и 4.8% для А- и В-вакансии соответственно, что хо-

рошо согласуется с данными [10]. Это укорочение может говорить об усилении связи Fe_B-O_1 . Объемы вакансионных пор тетраэдрической и октаэдрической вакансии составляют 4.96 \AA^3 и 15.44 \AA^3 , что на 57% и 15% больше, чем объемы не занятых в бездефектной решетке тетра- и октаэдрических междоузлий. Внешнее напряжение в сверхячейке с А-вакансией возрастает на 7.36 кбар, а в сверхячейке с В-вакансией — снижается на 10.61 кбар.

Изменения полного магнитного момента сверхячейки в случаях с тетраэдрической и октаэдрической вакансией составляют $+8\mu_B$ и $-2\mu_B$ соответственно, что согласуется с данными работ, выполненных с учетом [10] и без учета [29] сильных электронных корреляций. По вычисленным в работах [10, 29] значениям магнитных моментов катионов

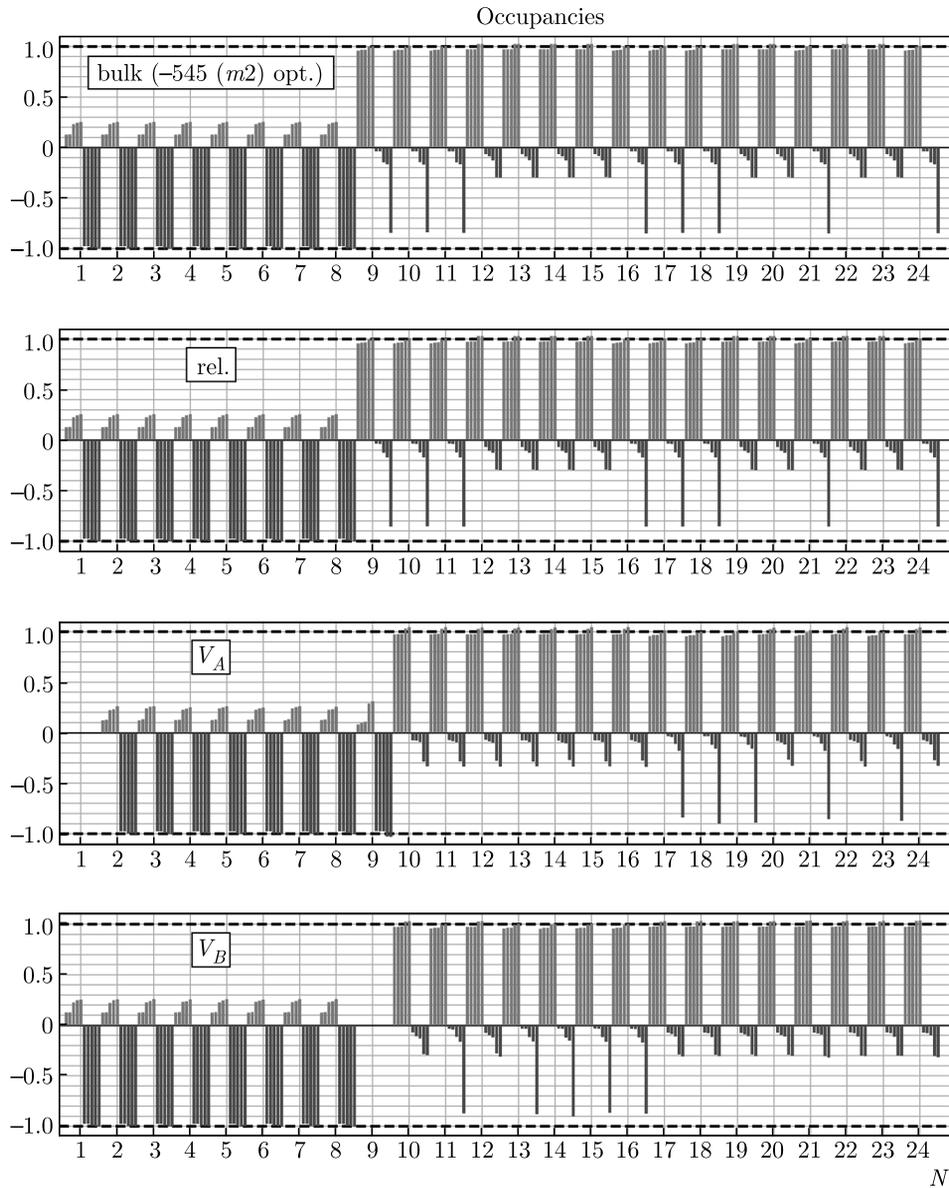


Рис. 18. Степень заселенности d -орбиталей со спином вверх (в положительном направлении оси ординат) и со спином вниз (с обратным знаком в отрицательном направлении оси ординат) для бездефектных и дефектных случаев

видно, что в этих работах разницы двух- и трехвалентных В-катионов найдено не было ни в дефектном, ни в бездефектном случаях. В данной работе эти отличия были получены (рис. 18, рис. 19). Из рис. 18 видно, что в случаях с А- и В-вакансиями число двухвалентных катионов в В-подрешетке снижается с восьми до пяти штук. Исходя из полученного числа двух- и трехвалентных катионов А- и В-подрешеток, с помощью ионной модели магнетита можно получить, что в случае А-вакансии полный магнитный момент сверхячейки должен состав-

лять $\mu_{V_A} = 5 \cdot 4\mu_B + 11 \cdot 5\mu_B - 7 \cdot 5\mu_B = 40\mu_B$, что дает изменение $8\mu_B$ по сравнению с бездефектным случаем ($\mu = 32\mu_B$). Аналогичным образом объясняется разница в случае вакансии В-подрешетки. Полученные данные согласуются с данными работы [7], в которой отмечается, что в случае В-вакансии число трехвалентных В-катионов в сверхячейке увеличивается на два, что по мнению авторов соответствует удалению В-катиона и перераспределению двух электронов так, чтобы ближайшими соседями В-вакансии оказались Fe^{3+} , что восстановило бы

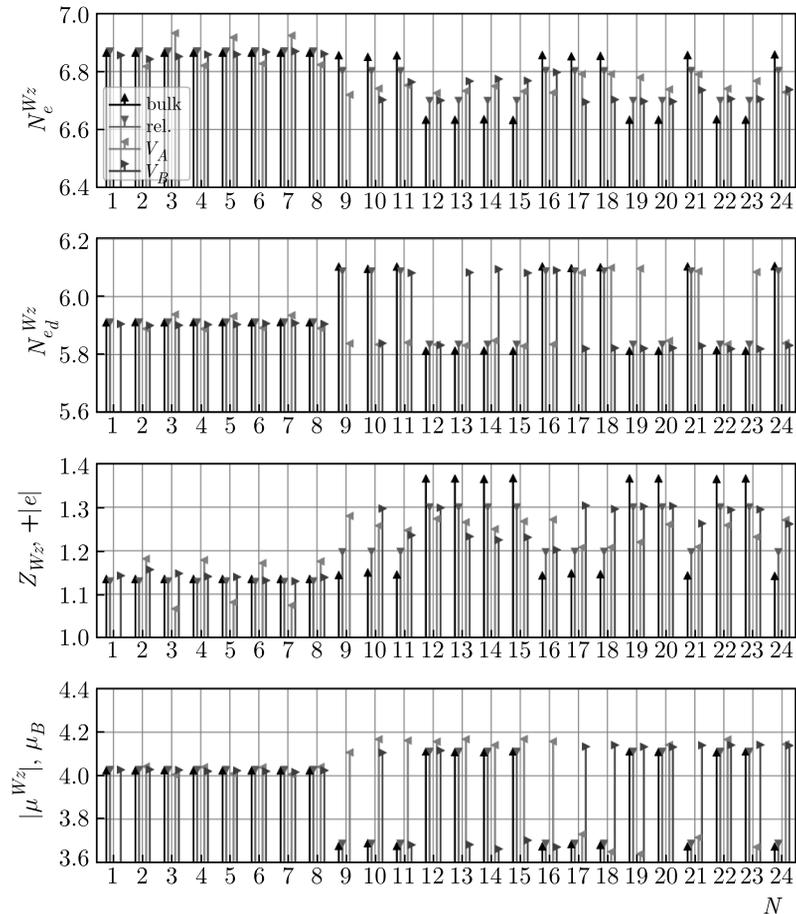


Рис. 19. Число электронов в сфере с радиусом Вигнера–Зейтца N_e^{WZ} , его d -составляющие N_{ed}^{WZ} , эффективные заряды ионов Z^{WZ} ($Z = 8 - N_e^{WZ}$) и магнитные моменты μ^{WZ} для катионов с номерами N . Использованный в расчетах псевдопотенциал включал восемь валентных состояний для железа. А-катионы имеют номера 1–8, В-катионы — 16–24. Заряд удаленного катиона обозначен равным 0

формальный заряд кислорода O^{2-} у шести ближайших к вакансии анионов.

В данной работе, как и в работе [7], ближайшими соседями В-вакансии оказываются только трехвалентные катионы. В случае А-вакансии большинство ближайших к ней В-катионов — также трехвалентные. При этом в области вакансионной поры снижается электронная плотность. Разницы в значениях суммарного заряда между бездефектным и дефектным случаями, вычисленные при интегрировании по сферам Вигнера–Зейтца, центрированных на атомах, составляют 6.8 е и 7.1 е для А- и В-вакансии соответственно. Эти значения близки к вычисленными значениями зарядов катионов в бездефектной сверхячейке (рис. 19). Сравнение плотности электронных состояний, вычисленных для дефектных и бездефектных случаев показывает, что в случаях с

дефектами ширина запрещенной зоны увеличивается (рис. 20).

4. ОБСУЖДЕНИЕ

Таким образом, в настоящей работе в рамках метода DFT+U были рассмотрены свойства кубической фазы магнетита и ее точечных дефектов. Полученные данные позволяют сделать следующие выводы.

1. Самосогласованное решение для равновесной ионной конфигурации, отвечающей симметрии кубической фазы магнетита, может характеризоваться зарядовым упорядочением, отвечающим схеме Вервея, орбитальным упорядочением, а также иметь запрещенную зону, порядок которой соответствует наблюдаемому экспериментально выше температуры Вервея порядку псевдошели.

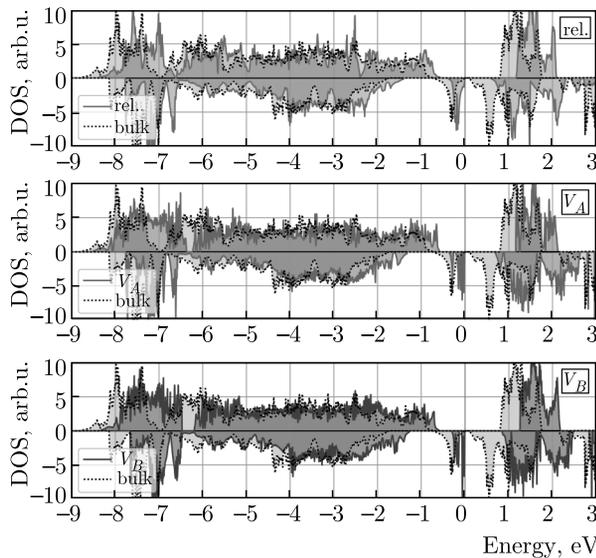


Рис. 20. Изменение электронной плотности для случаев с релаксацией атомов и дефектами

Наличие этих черт в статической DFT+U модели кубической фазы магнетита, не включающей, кроме структуры, никаких температурных эффектов, может указывать на то, что вклад в наблюдаемую выше температуры Вервея проводимость магнетита вносят в основном динамические факторы, которые необходимо учесть для возможности сравнения расчетных и экспериментальных данных.

2. При вычислении свойств магнетита в малых сверхячейках, включающих 14 атомов, могут появляться нежелательные эффекты, связанные с ее размером и несоответствием элементарной ячейке структуры шпинели; в то же время, наличие множества степеней свободы в больших сверхячейках не позволяет однозначно утверждать, что найденный минимум является состоянием с наименьшей полной энергией для данной структуры. Вариация начальных приближений с последующим анализом полученных решений выявила, что решения, обладающие локализованными состояниями у половины В-катионов, с одинаковыми и как можно большими числами заполнения этих состояний, отличаются наименьшими полными энергиями среди найденных для кубической фазы.

3. Релаксация атомов в сверхячейке кубической фазы при фиксированной постоянной решетки приводит к понижению полной энергии системы и увеличению запрещенной зоны. При этом решетка искажается с понижением симметрии. Такой эффект, возникающий при снятии ограничений симметрии с позиций ионов, является отражением общего стремления системы перейти в основное состояние с низ-

котемпературной симметрией. Он вносит дополнительную неопределенность при интерпретации данных о релаксации локального окружения дефекта.

4. Создание дефекта в нерелаксированной структуре кубической фазы позволило найти более глубокий минимум для дефектной конфигурации, чем создание дефекта в отрелаксированной структуре, среди рассмотренных случаев. При этом эффект релаксации локального окружения дефекта кубической фазы оказывается существенным: без релаксации атомов в дефектной конфигурации энергии образования дефектов кубической фазы оказываются примерно в два раза выше, чем с релаксацией.

5. При образовании катионной вакансии в кубической фазе магнетита, по-видимому, происходит укорочение и усиление связей ближайших к вакансии анионов кислорода с оставшимися катионами железа, что позволяет частично восстановить заряд иона O^{2-} . В общих чертах это согласуется с ионной моделью магнетита. При этом в кубической сверхячейке с дефектом зарядовое и орбитальное упорядочения полностью нарушены.

6. Полученные значения энергий образования вакансий кубической фазы составляют 2.50 и 1.26 эВ для вакансий А- и В-подрешеток соответственно. Эти данные отличаются от энергий образования, представленных в DFT+U-работе [6]. В работе [6] указывается, что при проведении расчетов проводилась полная оптимизация геометрии сверхячейки, однако замечаний о том, сохранялась или нет симметрия кубической фазы при расчете бездефектной сверхячейки, не приводится. В данной работе показано, что при оптимизации геометрии кубической фазы без сохранения симметрии ее структура искажается. Поэтому можно предположить, что в работе [6] исследовались дефекты структуры, более близкой к структуре низкотемпературной, а не кубической фазы. Это позволяет говорить о том, что в данной работе получены более надежные данные о дефектах кубической фазы, чем в работе [6].

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Выполненные расчеты и анализ полученных результатов позволяют сделать следующие выводы.

1. Определены схемы зарядового и орбитального упорядочения в моделях кубической фазы магнетита с 14 и 56 атомами в элементарной ячейке. Показано наличие размерного эффекта: при сохранении схемы Вервея в больших системах происходит частичная разориентация орбиталей, снижающая полную энергию.

2. Проведено определение U_{eff} для модели с 56 атомами на основе экспериментальных данных по щели.

3. Показано, что релаксация положений атомов в кубической фазе в модели с 56 атомами приводит к изменению орбитального упорядочения при сохранении зарядового упорядочения и к росту ширины щели примерно на порядок. Данные изменения, по-видимому, соответствуют стремлению системы перейти в низкотемпературную фазу.

4. Показано, что удаление атома в расчетах энергии образования вакансий должно проводиться из кубической фазы (ниже E_V).

5. Проанализирована локальная структура решетки после релаксации вакансий Fe_A/Fe_B .

6. Получены энергии образования вакансий E_{V_A/V_B}^F для системы 56 атомов, существенно отличающиеся от данных работы [6] по абсолютным значениям. Подробный анализ сделанных приближений позволяет считать результаты настоящей работы более надежными, чем результаты работы [6].

Финансирование. Работа выполнена при финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 20-21-00159, 20-32-90081).

ЛИТЕРАТУРА

1. К. И. Кугель, Д. И. Хомский, УФН **136**, 621 (1982).
2. С. В. Стрельцов, Д. И. Хомский, УФН **187**, 1205 (2017).
3. V. I. Anisimov, J. Zaanen, and O. K. Andersen, Phys. Rev. B **44**, 943 (1991).
4. C. N. Lininger, C. A. Cama, K. J. Takeuchi, A. C. Marschlok, E. S. Takeuchi, A. C. West, and M. S. Hybertsen, Chem. Mater. **30**, 7922 (2018).
5. H. Liu and C. Di Valentin, J. Phys. Chem. C **121**, 25736 (2017).
6. D. Li, B. Qu, H. Y. He, Y. G. Zhang, Y. Xu, B. C. Pan, and R. Zhou, Phys. Chem. Chem. Phys. **18**, 7789 (2016).
7. C. L. Muhich, V. J. Aston, R. M. Trottier, A. W. Weimer, and C. B. Musgrave, Chem. Mater. **28**, 214 (2016).
8. Y. Meng, X. W. Liu, C. F. Huo, W. P. Guo, D. B. Cao, Q. Peng, A. Dearden, X. Gonze, Y. Yang, J. Wang et al., J. Chem. Theory Comput. **12**, 5132 (2016).
9. J. Noh, O.I. Osman, S.G. Aziz, P. Winget, and J. L. Brédas, Sci. Technol. Adv. Mater. **15**, 044202 (2014).
10. R. Arras, B. Warot-Fonrose, and L. Calmels, J. Phys. Condens. Matter **25**, 256002 (2013).
11. R. Arras, L. Calmels, and B. Warot-Fonrose, Appl. Phys. Lett. **100**, 032403 (2012).
12. M. S. Senn, I. Loa, J. P. Wright, and J. P. Attfield, Phys. Rev. B **85**, 125119 (2012).
13. T. Fukushima, K. Yamauchi, and S. Picozzi, J. Phys. Soc. Jpn. **80**, 014709 (2011).
14. F. Zhou and G. Ceder, Phys. Rev. B **81**, 205113 (2010).
15. K. Yamauchi, T. Fukushima, and S. Picozzi, Phys. Rev. B **79**, 212404 (2009).
16. P. Piekarz, K. Parlinski, and A. M. Oleś, Phys. Rev. B **76**, 165124 (2007).
17. I. Leonov, A. N. Yaresko, V. N. Antonov, and V. I. Anisimov, Phys. Rev. B **74**, 165117 (2006).
18. H. P. Pinto and S. D. Elliott, J. Phys. Condens. Matter **18**, 10427 (2006).
19. H. T. Jeng, G. Y. Guo, and D. J. Huang, Phys. Rev. B **74**, 195115 (2006).
20. H. T. Jeng, G. Y. Guo, and D. J. Huang, Phys. Rev. Lett. **93**, 156403 (2004).
21. I. Leonov, A. N. Yaresko, V. N. Antonov, M. A. Korotkin, and V. I. Anisimov, Phys. Rev. Lett. **93**, 146404 (2004).
22. V. I. Anisimov, I. S. Elfimov, N. Hamada, and K. Terakura, Phys. Rev. B **54**, 4387 (1996).
23. A. D. Rowan, C. H. Patterson, and L. V. Gasparov, Phys. Rev. B **79**, 205103 (2009).
24. C. Freysoldt, B. Grabowski, T. Hickel, J. Neugebauer, G. Kresse, A. Janotti, and C. G. Van de Walle, Rev. Mod. Phys. **86**, 253 (2014).
25. M. Cococcioni and S. de Gironcoli, Phys. Rev. B **71**, 035105 (2005).
26. B. Meredig, A. Thompson, H. A. Hansen, C. Wolverton, and A. van de Walle, Phys. Rev. B **82**, 195128 (2010).
27. J. P. Allen and G. W. Watson, Phys. Chem. Chem. Phys. **16**, 21016 (2014).
28. C. Ricca, I. Timrov, M. Cococcioni, N. Marzari, and U. Aschauer, Phys. Rev. Res. **2**, 023313 (2020).

29. S. Hendy, B. Walker, N. Laycock, and M. Ryan, *Phys. Rev. B* **67**, 085407 (2003).
30. S. Zhang and J. Northrup, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 2339 (1991).
31. K. Momma and F. Izumi, *J. Appl. Crystallogr.* **44**, 1272 (2011).
32. H. Okudera, K. Kihara, and T. Matsumoto, *Acta Crystallogr., Sect. B: Struct. Sci.* **52**, 450 (1996).
33. E. J. W. Verwey, *Nature* **144**, 327 (1939).
34. J. Yoshida and S. Iida, *J. Phys. Soc. Jpn.* **42**, 230 (1977)
35. M. Iizumi, T. F. Koetzle, G. Shirane, S. Chikazumi, M. Matsui, and S. Todo, *Acta Crystallogr., Sect. B: Struct. Crystallogr. Cryst. Chem.* **38**, 2121 (1982).
36. J. P. Wright, J. P. Attfield, and P. G. Radaelli, *Phys. Rev. B* **66**, 214422 (2002).
37. M. S. Senn, J. P. Wright, and J. P. Attfield, *Nature* **481**, 173 (2012).
38. A. Yanase and K. Siratori, *J. Phys. Soc. Jpn.* **53**, 312 (1984).
39. A. Banerjee and A. J. Pal, *J. Phys. Condens. Matter* **32**, 055701 (2020).
40. L. V. Gasparov, D. B. Tanner, D. B. Romero, H. Berger, G. Margaritondo, and L. Forró, *Phys. Rev. B* **62**, 7939 (2000).
41. J. H. Park, L. H. Tjeng, J. W. Allen, P. Metcalf, and C. T. Chen, *Phys. Rev. B* **55**, 12813 (1997).
42. M. S. Senn, J. P. Wright, J. Cumby, and J. P. Attfield, *Phys. Rev. B* **92**, 024104 (2015).
43. N. C. Tombs and H. P. Rooksby, *Acta Cryst.* **4**, 474 (1951).
44. S. C. Abrahams and B. A. Calhoun, *Acta Cryst.* **6**, 105 (1953).
45. M. E. Fleet, *Acta Crystallogr., Sect. B: Struct. Crystallogr. Cryst. Chem.* **37**, 917 (1981).
46. G. Kresse and J. Hafner, *Phys. Rev. B* **47**, 558 (1993)
47. G. Kresse and J. Furthmüller, *Phys. Rev. B* **54**, 11169 (1996).
48. S. L. Dudarev, G. A. Botton, S. Y. Savrasov, C. J. Humphreys, and A. P. Sutton, *Phys. Rev. B* **57**, 1505 (1998).
49. L. Zhang, M. Šob, Z. Wu, Y. Zhang, and G. H. Lu, *J. Phys. Condens. Matter* **26**, 086002 (2014).
50. P. Vinet, J. Ferrante, J. R. Smith, and J. H. Rose, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **19**, L467 (1986).
51. K. I. Kugel' and D. I. Khomskii, *Sov. Phys. Usp.* **25**, 231 (1982).
52. K. Glazyrin, C. McCammon, L. Dubrovinsky, M. Merlini, K. Schollenbruch, A. Woodland, and M. Hanfland, *Am. Mineral.* **97**, 128 (2012).

ПОПЕРЕЧНЫЙ ТЕРМОМАГНИТНЫЙ ЭФФЕКТ В ДВУМЕРНОМ ЭЛЕКТРОННОМ ГАЗЕ ПОВЕРХНОСТНОЙ ПОЛУПРОВОДНИКОВОЙ СВЕРХРЕШЕТКИ

*А. А. Перов**, *П. В. Пижун*

*Нижегородский государственный университет им. Н. И. Лобачевского
603950, Нижний Новгород, Россия*

Поступила в редакцию 15 марта 2021 г.,
после переработки 7 апреля 2021 г.
Принята к публикации 21 апреля 2021 г.

В одноэлектронном приближении во внешнем магнитном поле при наличии градиента температуры рассчитана поверхностная плотность тока носителей заряда в двумерных двоякопериодических полупроводниковых сверхрешетках n -типа. Магнитное поле полагалось постоянным, однородным, приложенным перпендикулярно плоскости электронного газа. В результате совместного решения уравнения Шредингера и кинетического уравнения Больцмана показано, что зависимости поверхностной плотности поперечного тока от температуры и модуля градиента температуры имеют существенно нелинейный характер и на них присутствуют участки с отрицательной поперечной дифференциальной проводимостью. Зависимость времени релаксации от квазиимпульса электрона учтена в модели феноменологически через закон дисперсии носителей в магнитных подзонах.

DOI: 10.31857/S0044451021080113

1. ВВЕДЕНИЕ

Известно, что магнитное поле квантует поперечное движение заряженной частицы, а поле кристаллической решетки приводит к образованию энергетических зон. В результате в зонах проводимости и в валентной зоне полупроводников в магнитном поле формируются «лестницы» уровней Ландау. В действительности, как показывают результаты первых теоретических работ, выполненных в середине прошлого столетия [1, 2], уровни Ландау в кристаллах уширяются в зоны экспоненциально малой ширины. Причиной тому является снятие вырождения состояний в магнитном поле по центру орбиты вследствие взаимодействия заряженной частицы с электростатическим периодическим полем кристалла.

Непараболичность закона дисперсии носителей в материалах приводит к нетривиальному течению термомагнитных [3–6], магнитотранспортных [7] и магнитооптических [8] эффектов. Так, в работе [3] рассчитан коэффициент Нернста–Эттингаузена (НЭ) в одномерных сверхрешетках с косинусои-

дальным законом дисперсии. В сильных магнитных полях, ориентированных в плоскости слоя сверхрешетки, при рассеянии носителей на полярных оптических фонах коэффициент НЭ менял знак. В кристаллах селенида ртути с примесями атомов галлия и железа поперечный эффект НЭ протекал со сменой знака при изменении концентрации примесных атомов галлия, определяющих степень упорядочения ионов железа в образце [4]. В работе [5] исследованы осцилляции коэффициента Нернста в щелевом и бесщелевом графене с учетом зависимости положения уровней Ландау от величины электрического поля. В недавней работе [6] построена квантовая кинетическая теория термоэлектрического транспорта в магнитном поле. Учет топологической фазы Берри магнитных подзон блоховских электронов, приводящей к возникновению аномальной скорости носителей, позволил авторам рассчитать эффект Нернста и показать справедливость соотношений Онзагера в рамках развитой ими кинетической теории.

Предметом нашего исследования является двумерный электронный газ в области полупроводникового гетероперехода с поверхностной двоякопериодической сверхрешеткой с периодом a , помещенно-

* E-mail: wkb@inbox.ru

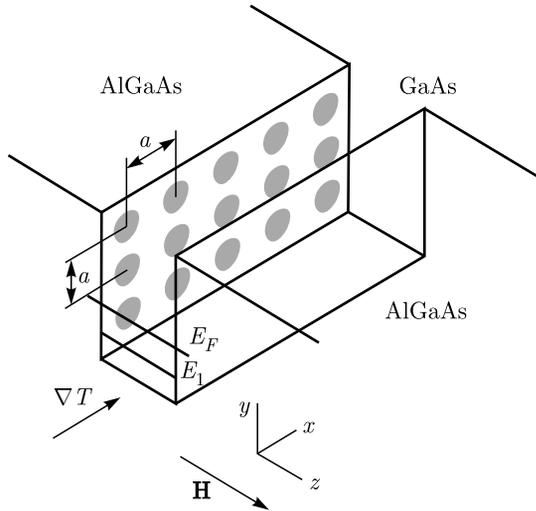


Рис. 1. Схема полупроводникового гетероперехода с поверхностной сверхрешеткой, помещенного в перпендикулярное магнитное поле **H**

го в постоянное однородное перпендикулярное магнитное поле. На рис. 1 представлена типичная схема такой структуры. В присутствии градиента температуры в плоскости гетероперехода в направлении, перпендикулярном магнитному полю и ∇T , возникает поверхностный термомагнитный ток. В данной работе использована простая модель знакопеременного периодического электростатического потенциала сверхрешетки, которая, по нашему мнению, призвана отразить фундаментальные свойства электронного спектра и особенности возникновения поперечного термомагнитного тока в изучаемых структурах. Эффект появления нернстовского тока сам по себе не является новым, но в рассматриваемых модельных структурах ранее в литературе не освещался и не обсуждался.

Идея искусственных периодических структур, обладающих свойствами, не реализуемыми в природных веществах, была высказана Келдышем еще в 1962 году [9]. Но реальным содержанием она наполнилась лишь после появления технологии молекулярно-лучевой эпитаксии, позволившей изготавливать периодические искусственные структуры с заранее заданными параметрами слоев. С тех пор многие лаборатории стали уделять большое внимание поискам новых периодических структур. На рубеже 1995–1998 годов группой Леденцова были выращены дwoякопериодические планарные массивы квантовых точек InAs на подложке из арсенида галлия [10]. Такие структуры обладали малой периодичностью порядка 20 нм, но степень

упорядоченности квантовых точек была невысокой, что сказывалось на ожидаемых результатах экспериментов по магнитотранспорту и магнитооптике. С развитием технологии субмикронной электронной литографии стало возможным формировать дwoякопериодические сверхрешетки с требуемым периодом и симметрией элементарной ячейки. Теория квантовых состояний носителей заряда в таких поверхностных сверхрешетках опередила создание самих структур и эксперименты на несколько десятилетий. К настоящему моменту экспериментально изучена минизонная структура спектра электронов в поверхностных дwoякопериодических полупроводниковых сверхрешетках по результатам магнитотранспортных и магнитооптических измерений [11–13]. Вплоть до настоящего времени идет поиск новых материалов для создания двумерных искусственных кристаллов [14]. Литографические технологии позволяют в итоге «конструировать» зонную структуру носителей и изучать, например, безмассовые дираковские квазичастицы в решетке с элементарной ячейкой в виде правильного шестиугольника [15].

Для актуальных в современных экспериментах параметров полупроводниковых сверхрешеток [11, 12] и величин напряженности магнитного поля порядка нескольких десятков тысяч эрстед типичное расщепление в спектре носителей, обусловленное действием электростатического поля сверхрешетки на электрон, оказывается много меньше характерной энергии Ландау $\hbar\omega_c$. Поэтому становится возможным проводить модельные расчеты квантовых состояний электрона в одноуровневом приближении, когда можно пренебречь примесью состояний Ландау в состояниях магнитных блоховских подзон данного уровня $E_S = \hbar\omega_c(S + 1/2)$ с заданным значением номера S . Кроме того, поскольку характерный период сверхрешеток в несколько десятков нанометров на два порядка превосходит масштаб естественной периодичности кристалла, использование приближения изотропной эффективной массы в Γ -точке является оправданным.

2. ТЕОРЕТИЧЕСКАЯ МОДЕЛЬ И МЕТОД РАСЧЕТА

Классификация электронных состояний во внешних постоянном однородном магнитном и дwoякопериодическом электростатическом полях по неприводимым проективным представлениям группы магнитных трансляций возможна лишь

в случае, когда магнитное поле ориентировано перпендикулярно плоскости газа носителей [16]. При этом необходимо также, чтобы число квантов магнитного потока, пронизывающего элементарную ячейку кристалла, было рациональным числом:

$$\frac{\Phi}{\Phi_0} = \frac{eHa^2}{2\pi\hbar c} = \frac{p}{q}.$$

В результате электронная волновая функция также является собственной функцией оператора магнитной трансляции и удовлетворяет обобщенным условиям Блоха в магнитном поле [17] (условиям Блоха–Пайрлса).

Гамильтониан, описывающий квантовомеханическое движение электрона в рассматриваемой системе, имеет вид

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + V_0 \left(\cos \frac{2\pi x}{a} + \cos \frac{2\pi y}{a} \right) \hat{E}, \quad (1)$$

где V_0 — амплитуда периодического потенциала сверхрешетки, \hat{H}_0 — гамильтониан электрона в постоянном однородном магнитном поле, \hat{E} — единичный оператор. Предполагается заполненным низший уровень размерного квантования E_1 в области гетероперехода (см. рис. 1). Эффективная масса m^* электрона в GaAs взята равной $0.067m_e$, период сверхрешетки $a = 50$ нм.

Рассчитаем спектр магнитных подзон, образовавшихся на месте основного (нулевого) уровня энергии в магнитном поле, $E_0 = \hbar\omega_c/2$. Волновая функция электрона в μ -й магнитной подзоне ($\mu = \overline{1, p}$), удовлетворяющая обобщенным граничным условиям Блоха в магнитном поле, представляется в виде симметризованной линейной комбинации базисных состояний Ландау φ_0 в постоянном магнитном поле:

$$\begin{aligned} \psi_{\mathbf{k}}^{\mu}(x, y) = & \sum_{n=1}^p C_n^{\mu}(\mathbf{k}) \times \\ & \times \sum_{l=-\infty}^{\infty} \varphi_0 \left(\frac{x - x_0 - lqa - nqa/p}{l_H} \right) \times \\ & \times \exp(ik_y y) \exp \left[ik_x \left(lqa + \frac{nqa}{p} \right) \right] \times \\ & \times \exp \left[\frac{2\pi iy}{a} (lp + n) \right], \quad (2) \end{aligned}$$

где l_H — магнитная длина, $x_0 = c\hbar k_y / eH = k_y l_H^2$. Волновые функции (2) представляют собой p -мерное расслоение над двумерным тором — магнитной зоной Бриллюэна (МЗБ):

$$-\frac{\pi}{qa} \leq k_x \leq \frac{\pi}{qa}, \quad -\frac{\pi}{a} \leq k_y \leq \frac{\pi}{a}.$$

Численное решение задачи на собственные значения и собственные функции для гамильтониана (1) проводилось нами путем унитарных преобразований базиса, сохраняющих норму вектора.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Расчеты положения магнитных подзон Ландау нулевого уровня энергии в магнитном поле в зависимости от числа квантов магнитного потока через элементарную ячейку сверхрешетки приведены на рис. 2. Амплитуда периодического потенциала сверхрешетки принята в расчетах равной $V_0 = 1$ мэВ. Количество магнитных подзон совпадает с числителем дроби p/q . Положение уровня Ферми таково, что заполнена низшая магнитная подзона Ландау ($\mu = 1$) при $p/q = 4/1$ и концентрация носителей заряда составляет величину порядка $n = 10^{11}$ см⁻². Модуль вектора напряженности магнитного поля при указанных выше значениях периода сверхрешетки и числа квантов магнитного потока равен $H = 6.626 \cdot 10^4$ Э. Ширина расщепленной зонной структуры при этом много меньше характерной энергии Ландау $\hbar\omega_c = 2\pi\hbar^2 p / m^* a^2 q \approx 11.4$ мэВ.

Расчеты законов дисперсии носителей в магнитных подзонах нулевого уровня Ландау приведены на рис. 3 при числе квантов потока $p/q = 4/1$. Поскольку модельный периодический потенциал сверхрешетки обладает центром инверсии, согласно теореме Крамерса, в магнитном поле законы дисперсии

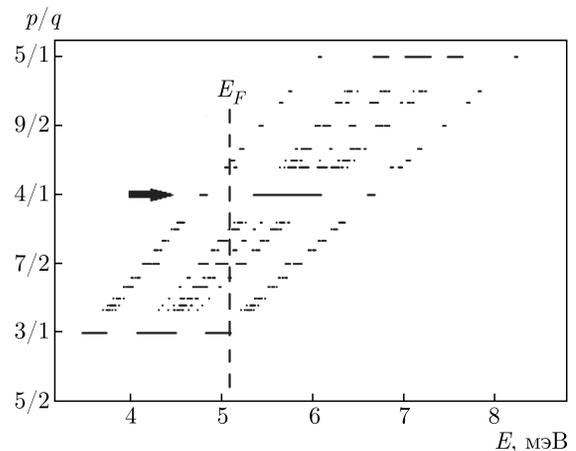


Рис. 2. Зависимость положения магнитных блоховских подзон, относящихся к основному уровню Ландау, от числа квантов магнитного потока через элементарную ячейку сверхрешетки в модельной структуре AlGaAs/GaAs/AlGaAs при параметрах $V_0 = 1$ мэВ, $m^* = 0.067m_0$, $a = 50$ нм

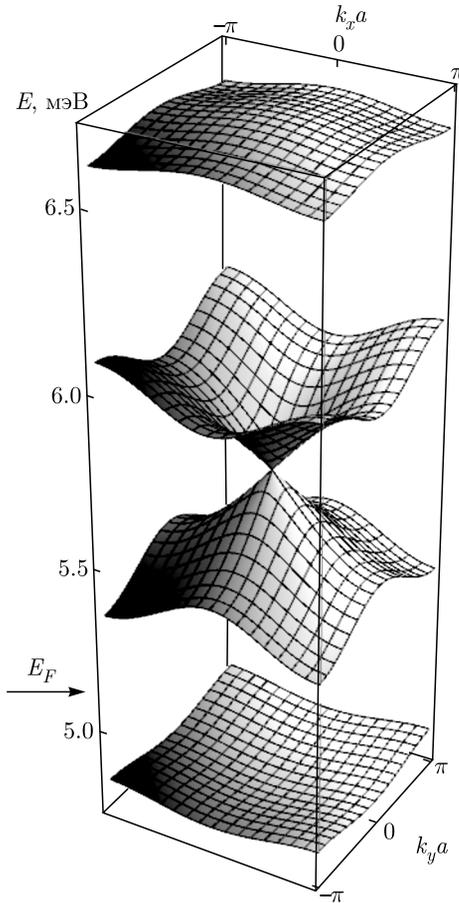


Рис. 3. Законы дисперсии в магнитных подзонах, относящихся к основному уровню Ландау, при $p/q = 4/1$ в модельной структуре AlGaAs/GaAs/AlGaAs с параметрами $V_0 = 1$ мэВ, $m^* = 0.067m_0$, $a = 50$ нм

электрона в подзонах есть четные функции проекций квазиимпульса в МЗБ. Положение уровня Ферми показано стрелкой на рис. 3. Симметрия квантовых состояний носителей такова, что при четных значениях числителя дроби p/q в решетках с тетрагональной элементарной ячейкой центральные магнитные подзоны касаются друг друга. В случае, когда периодический электростатический потенциал поля сверхрешетки есть возмущение общего типа, различные магнитные подзоны спектра остаются разделенными щелями [18].

Расчетам поверхностной плотности термомагнитного поперечного тока (в y -направлении)

$$j_y^\mu = \frac{2e}{\hbar^2} \int v_y^\mu f^\mu(\mathbf{k}, \zeta) dp_x dp_y \quad (3)$$

в нижней магнитной подзоне Ландау ($\mu = 1$) предшествовало численное решение квазиклассического однородного кинетического уравнения Больцмана в релаксационном приближении (время релаксации $\tau > 2\pi\hbar/kT$):

$$\frac{|e|\eta\zeta}{\hbar} \frac{\partial f^\mu(\mathbf{k}, \zeta)}{\partial k_x} = -\frac{1}{\tau} [f^\mu(\mathbf{k}, \zeta) - F^\mu(\mathbf{k})], \quad (4)$$

где $F^\mu(\mathbf{k}) = f^\mu(\mathbf{k}, 0)$ — равновесная функция распределения Ферми–Дирака, $\zeta = (\nabla T)_x$, η — постоянная Зеебека (для GaAs $\eta \simeq 3 \cdot 10^{-6}$ ед. СГСВ/К [19]).

Зависимость времени релаксации от квазиимпульса электрона учтена нами феноменологически через закон дисперсии двумерных носителей $\varepsilon(\mathbf{p})$ в рамках наиболее подходящей модели, развитой в работе [20]:

$$\tau(\mathbf{p}) \sim (kT)^\beta \varepsilon(\mathbf{p})^{\alpha+0.5}.$$

Расчеты поперечного тока были проведены для случаев рассеяния электрона на нейтральных примесях ($\alpha = 0, \beta = 0$) и акустических фононах ($\alpha = -0.5, \beta = -1$). Проекция вектора скорости $v_y^\mu(\mathbf{k})$ электрона и его эффективная масса в подзоне Ландау существенно зависят от точки в МЗБ вследствие непараболичности спектра. Результаты расчетов проекции скорости $v_y^1(\mathbf{k})$ и функции распределения носителей по импульсам $f^1(\mathbf{k}, \zeta)$ представлены на рис. 4. Белые контурные линии задают сечения функции распределения, а тонированные области соответствуют сечениям проекции скорости $v_y^1(\mathbf{k})$ в МЗБ. Более темные области тона отвечают меньшим значениям проекции скорости. При ненулевом градиенте температуры (рис. 4б, в, г) неравновесная функция распределения Больцмана, в отличие от равновесной (рис. 4а), не обладает симметрией поворотной оси четвертого порядка в МЗБ, и в неоднородном температурном поле с заданным градиентом максимум распределения носителей смещается от центра МЗБ в y -направлении.

На рис. 5а представлены результаты расчетов y -проекции поверхностной плотности тока в изучаемой модельной структуре в зависимости от величины градиента температуры. Зависимости 1 и 2 на рис. 5а соответствуют случаям рассеяния носителей заряда на нейтральных атомах примеси и акустических фононах. Температура электронного газа в области гетероперехода со сверхрешеткой в модельных расчетах взята равной $T = 2$ К. При малых значениях градиента температуры кинетическое уравнение Больцмана может быть решено аналитически [21]. В этом случае неравновесная поправка к функции распределения линейна по $|\nabla T|$, что и подтверждается численным расчетом. С ростом градиента температуры начальный линейный рост функции j_y^1 сменяется участком ее убывания, плотность термомагнитного тока имеет максимум. По мере роста градиента температуры функция распределения меняется таким образом, что вклад в

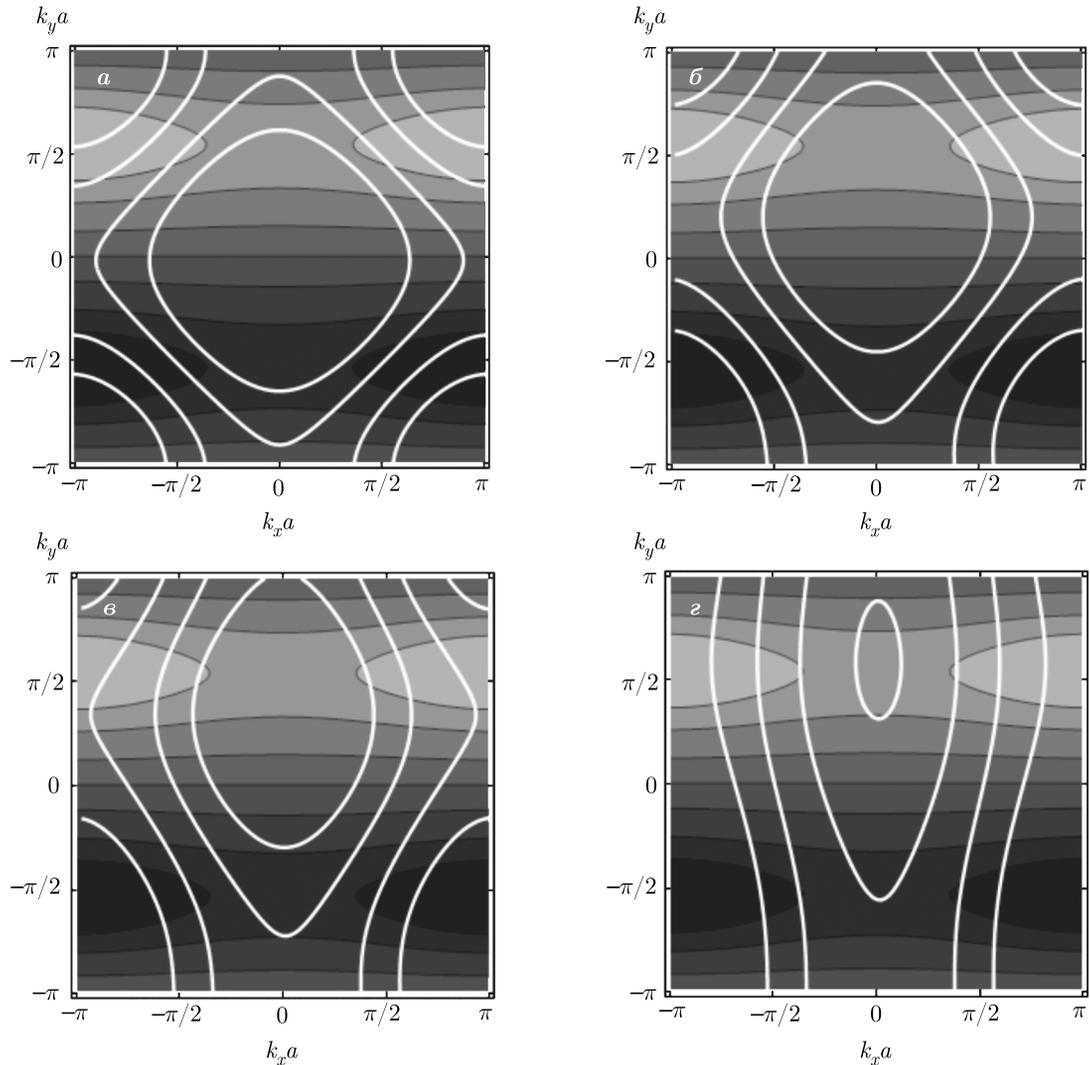


Рис. 4. Линии постоянного уровня функции распределения Больцмана и проекции скорости электрона $v_y^1(\mathbf{k})$ в нижней магнитной подзоне в МЗБ

выражение (3) от состояний носителей с положительной проекцией скорости в подзоне Ландау возрастает (см. рис. 4б, точка *A* на рис. 5а). Это приводит к увеличению значения j_y^1 вплоть до максимального (точка *B* на рис. 5а, рис. 4в). При дальнейшем возрастании модуля градиента температуры функция распределения носителей по импульсам не имеет ярко выраженного максимума в МЗБ и равновелико учитывает вклад в ток от состояний как с положительной, так и отрицательной *y*-проекцией скорости (см. рис. 4г). Имеет место участок с отрицательной поперечной дифференциальной проводимостью (точка *C* на рис. 5а).

При фоновом рассеянии становится вполне оправданным смещение максимума плотности то-

ка в область меньших значений градиента температуры. Время релаксации становится зависящим от абсолютной температуры газа, и область значений градиента температуры, отвечающая участку с отрицательной дифференциальной поперечной проводимостью, расширяется (кривая 2 на рис. 5а). Характерная ширина пика плотности тока на рис. 5а становится меньше по сравнению со случаем, когда имеет место лишь примесное рассеяние.

Таким образом, результаты проведенных в нашей работе модельных расчетов поверхностной плотности поперечного термомагнитного тока говорят о достаточно высокой чувствительности эффекта НЭ к механизму рассеяния носителей заряда.

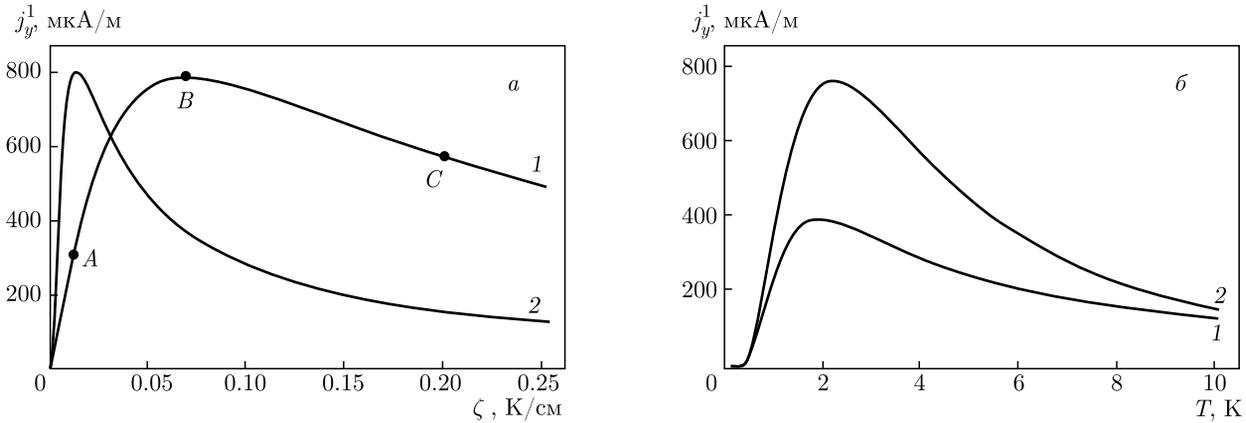


Рис. 5. Зависимости y -проекции поверхностной плотности терромагнитного тока от величины градиента температуры при $T = 2 \text{ K}$ (а) и от температуры электронного газа при $\zeta = 0.02 \text{ K}/\text{cm}$ (б): 1 — рассеяние на нейтральных атомах примеси; 2 — рассеяние на акустических фоновых

Расчеты плотности тока как функции температуры электронного газа в гетеропереходе при малом фиксированном значении $\zeta = 0.02 \text{ K}/\text{cm}$ представлены на рис. 5б. Начальный участок зависимости $j_y^1(T)$ при малом градиенте температуры демонстрирует степенной нелинейный характер, и плотность тока близка к нулю. С увеличением абсолютной температуры функция распределения носителей по импульсам ограничивает рост плотности тока.

4. ЭФФЕКТЫ СПИНОВОГО И СПИН-ОРБИТАЛЬНОГО РАСЩЕПЛЕНИЙ В СПЕКТРЕ

Представляется необходимым качественно обсудить вклад в терромагнитный ток от эффектов спинового и спин-орбитального расщеплений в спектре носителей. В рамках моделей, эквивалентных рассмотренной в данной работе, ранее нами были проведены расчеты квантовых состояний электронов в двоякопериодических сверхрешетках в перпендикулярном магнитном поле с учетом электронного спина (см., например, работы [22, 23]). Спин-орбитальное взаимодействие в электронном газе учитывалось как по типу Рашба, так и по типу Дрессельхауза для двумерных систем. В обоих случаях спиновая поляризация квантовых состояний носителей в МЗБ имела вихревую структуру в плоскости газа и была отличной от нуля функцией квазиимпульса с симметрией поворотной оси четвертого порядка в направлении магнитного поля. Величины спинового, спин-орбитального расщеплений в спектре, а также расщепления, определяемого дей-

ствием на электрон периодического электростатического поля сверхрешетки с указанными в настоящей работе параметрами сопоставимы между собой в магнитных полях порядка нескольких десятков тысяч эрстед. В силу связи спиновых и координатных степеней свободы электрона его скорость, например, в y -направлении в некотором квантовом состоянии будет определяться проекцией спиновой поляризации этого состояния на x -направление (спин-орбитальное взаимодействие Рашба) (рис. 6) и y -направление (для спин-орбитального взаимодействия Дрессельхауза). На рис. 6 указаны также изоэнергетические линии магнитной подзоны. Вклад от спиновой поляризации в поперечный поверхностный терромагнитный ток дается функцией распределения носителей по импульсам. Качественные оценки и предварительные расчеты показывают, что можно ожидать некоторого незначительного, определяемого константой спин-орбитального взаимодействия, вклада в ток $j_y^1(\zeta)$ от x -проекции спиновой поляризации состояний в линейной области явления переноса при наличии спин-орбитального взаимодействия по типу Рашба в электронном газе.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Спектр материалов, в которых теоретически и экспериментально изучаются терромагнитные эффекты в газе носителей заряда, необычайно широк. Двоякопериодические полупроводниковые сверхрешетки составляют класс таких материалов, где исследование транспорта носителей представляет ин-

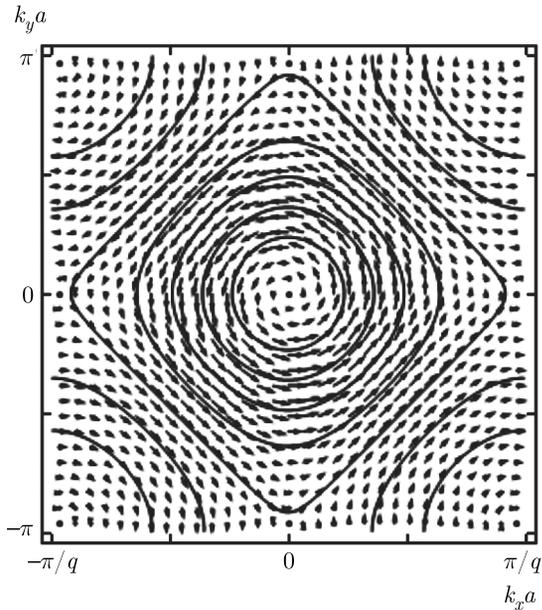


Рис. 6. Спиновая поляризация квантовых состояний носителей заряда в плоскости электронного газа со спин-орбитальным взаимодействием Рашба в нижней магнитной подзоне в модельной структуре AlGaAs/GaAs/AlGaAs с параметрами $V_0 = 1$ мэВ, $m^* = 0.067m_0$, $a = 50$ нм; g -фактор и константа спин-орбитального взаимодействия соответственно равны $g = -0.44$, $\alpha = 2.5 \cdot 10^{-2}$ эВ · нм

интерес не только с точки зрения фундаментальной науки, но и с позиций прикладного характера. В настоящей работе проведены необходимые расчеты и указаны области магнитных полей и параметров решеточных структур, когда становится возможным экспериментальное изучение эффекта НЭ в таких сверхрешетках. Рассчитанные в рамках модели зависимости поверхностной плотности тока от градиента температуры демонстрируют существенно нелинейное поведение. Имеет место эффект отрицательной дифференциальной поперечной проводимости. Установлены причины такой нелинейности, обусловленной различным вкладом в ток магнитных блоховских состояний электрона в подзоне. Эта нелинейность, в свою очередь, связана с непараболическостью электронного спектра, которая обуславливает возникновение и других, как известно, многочисленных нелинейных оптических и электрических эффектов в полупроводниковых сверхрешетках: блоховских осцилляций [24], электрофононного резонанса [25], оптического выпрямления [26, 27], самоиндуцированной прозрачности [28].

Расчет времени релаксации импульса носителей в системах с произвольным законом дисперсии является, вообще говоря, задачей нерешаемой. В двумерных полупроводниковых сверхрешетках во внешнем перпендикулярном однородном магнитном поле зависимость энергии электрона от его квазиимпульса в МЗБ существенно не параболическа, а число магнитных блоховских подзон определяется числом квантов магнитного потока через элементарную ячейку сверхрешетки. Магнитное поле, таким образом, не только квантует поперечное движение носителя заряда, но и является управляющим параметром, от величины которого зависит общее число магнитных подзон спектра. В то же время известно, что эффект НЭ в полупроводниках имеет место благодаря тому, что носители заряда с различными импульсами по-разному рассеиваются при взаимодействии с примесями и колебаниями решетки. Поэтому, в контексте возможного использования результатов нашей работы при постановке соответствующих транспортных экспериментов с электронным газом, необходимо отметить роль полученных в рамках обозначенной в работе модели результатов как отправной точки при изучении механизмов рассеяния двумерных электронов двоякопериодических сверхрешеток в магнитном поле. Сверхрешетки, созданные методами электронной литографии, являются предпочтительными в плане проведения магнитотранспортных экспериментов прежде всего благодаря высокой степени своей периодичности. Возможно также создавать сверхрешетки с различной симметрией элементарной ячейки, нарушать инверсионную симметрию, конструируя двумерный нецентросимметричный искусственный кристалл.

При наложении внешнего магнитного поля законы дисперсии носителей заряда в магнитных блоховских подзонах уже не будут четными функциями квазиимпульса, что, по нашему мнению, определенным образом должно отразиться на течении эффекта НЭ в двумерном электронном газе таких структур. Несомненно, потребуется развитие уже имеющихся экспериментальных технологий формирования сверхрешеток малой периодичности и магнитотранспортных измерений. Кроме того, экспериментальные образцы должны быть достаточно чистыми, чтобы уширение магнитных подзон спектра электронов не превышало величин разделяющих их энергетических щелей.

Финансирование. Работа поддержана Министерством науки и высшего образования РФ в рамках госзадания № 0729-2020-0058.

ЛИТЕРАТУРА

1. P. G. Harper, Proc. Phys. Soc. A **68**, 874 (1955).
2. F. A. Butler and E. Brown, Phys. Rev. B **166**, 630 (1968).
3. С. Р. Фигарова, Г. И. Гусейнов, В. Р. Фигаров, ФТП **52**, 712 (2018).
4. И. Г. Кулеев, А. Т. Лончаков, Г. Л. Штрапенин и др., ФТТ **39**, 1767 (1997).
5. З. З. Алисултанов, Письма в ЖЭТФ **99**, 813 (2014).
6. Akihiko Sekine and Naoto Nagaosa, Phys. Rev. B **101**, 155204 (2020).
7. V. Ya. Demikhovskii and A. A. Perov, Phys. Rev. B **75**, 205307 (2007).
8. A. A. Perov, L. V. Solnyshkova, and D. V. Khomitsky, Phys. Rev. B **82**, 165328 (2010).
9. Л. В. Келдыш, ФТТ **4**, 2265 (1962).
10. Н. Н. Леденцов, В. М. Устинов, В. А. Шукин и др., ФТП **32**, 385 (1998).
11. C. Albrecht, J. H. Smet, K. von Klitzing et al., Phys. Rev. Lett. **86**, 147 (2001).
12. M. C. Geisel, J. H. Smet, V. Umansky et al., Phys. Rev. Lett. **92**, 256801 (2004).
13. T. Schlösser, K. Ensslin, J. P. Kotthaus et al., Semicond. Sci. Technol. **11**, 1582 (1996).
14. Y. K. Ryu, R. Frisenda, and A. Castellanos-Gomez, Chem. Comm. **55**, 11498 (2019).
15. M. Polini, F. Guinea, M. Lewenstein et al., Nature Nanotechnol. **8**, 625 (2013).
16. Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Теоретическая физика*, т. 9, Наука, Москва (1978), § 60, с. 292.
17. D. J. Thouless, M. Kohmoto, M. P. Nightingale et al., Phys. Rev. Lett. **49**, 405 (1982).
18. Б. А. Дубровин, С. П. Новиков, ЖЭТФ **79**, 1006 (1980).
19. S. K. Sutradhar and D. Chattopadhyay, J. Phys. C **12**, 1693 (1979).
20. С. И. Борисенко, ФТП **33**, 1240 (1999).
21. А. И. Ансельм, *Введение в теорию полупроводников*, Наука, Москва (1978).
22. V. Ya. Demikhovskii and A. A. Perov, Europhys. Lett. **76**, 477 (2006).
23. А. А. Перов, Л. В. Солнышкова, Письма в ЖЭТФ **88**, 717 (2008).
24. L. Esaki and R. Tsu, IBM J. Res. and Dev. **14**, 61 (1970).
25. Г. М. Шмелев, Г. И. Цуркан, Нгуен Хог Шон, Изв. вузов, Физика **2**, 84 (1985).
26. V. V. Fomin and E. P. Pokatilov, Phys. Stat. Sol. (b) **97**, 161 (1980).
27. А. А. Булгаков, О. В. Шрамкова, ФТП **35**, 578 (2001).
28. А. А. Игнатов, Ю. А. Романов, ФТТ **17**, 3338 (1975).

НЕЛИНЕЙНОЕ ПОГЛОЩЕНИЕ ЛАЗЕРНОГО ИЗЛУЧЕНИЯ ПРИ РЕЛЯТИВИСТСКОМ ПЛАЗМЕННОМ РЕЗОНАНСЕ В НЕОДНОРОДНОЙ ПЛАЗМЕ

И. И. Метельский^{a,b,}, В. Ф. Ковалев^{b,c}, В. Ю. Быченков^{a,b}*

^a *Физический институт им. П. Н. Лебедева Российской академии наук
119991, Москва, Россия*

^b *Центр фундаментальных и прикладных исследований,
ВНИИА им. Н. Л. Духова
127030, Москва, Россия*

^c *Институт прикладной математики им. М. В. Келдыша Российской академии наук
125047, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 23 февраля 2021 г.,
после переработки 23 февраля 2021 г.
Принята к публикации 6 апреля 2021 г.

Развита аналитическая теория нелинейного резонансного поглощения электромагнитного излучения в неоднородной плазме с учетом релятивистской нелинейности возбуждаемого плазменного поля в окрестности критической плотности плазмы, что существенно продвигает границу теоретического описания резонансного поглощения лазерной плазмой в область высоких интенсивностей лазера. Получен коэффициент нелинейного резонансного поглощения в зависимости от четырех лазерно-плазменных управляющих параметров — лазерной интенсивности, масштаба неоднородности плазмы, ее температуры и угла падения лазерного излучения на плазму. Продемонстрирован нелинейный эффект подавления амплитуды поля плазменного резонанса и «отключения» резонансного поглощения с ростом лазерной интенсивности, что является следствием релятивистской нелинейности электронной плазмы в области критической плотности.

DOI: 10.31857/S0044451021080125

1. ВВЕДЕНИЕ

Одним из важнейших механизмов передачи энергии лазерного излучения в плазму является механизм резонансного поглощения в неоднородной плазме, при котором вблизи критической плотности падающая электромагнитная волна трансформируется в продольную плазменную волну, обеспечивая значительный, а иногда определяющий вклад в коэффициент поглощения.

Интерес к исследованию резонансного поглощения исторически во многом связан с экспериментами по лазерному термоядерному синтезу (ЛТС) [1], с вопросами генерации гармоник [2–5] и образования быстрых частиц в лазерной плазме [6–8]. Резонансное поглощение наблюдается при наклонном паде-

нии на неоднородную плазму p -поляризованного лазерного излучения с частотой ω_0 , когда в области, где она сравнивается с локальной частотой собственных колебаний плазмы ω_L , возникает явление плазменного резонанса, представляющее собой резонанс колебаний электронов в лазерном поле и электронных ленгмюровских колебаний плазмы [9]. Усиление таких электростатических плазменных колебаний приводит к высоким напряженностям электрического поля в окрестности критической плотности плазмы и обогащению спектра отраженного излучения высшими гармониками, что является неотъемлемым свойством падающего p -поляризованного излучения. Роль поляризации лазерного импульса в генерации гармоник для разных механизмов обсуждалась различными группами исследователей (см., например, обзор [10]).

Структура электромагнитного поля плазменного резонанса впервые детально исследовалась в рамках

* E-mail: metelski@lebedev.ru

линейной (по амплитуде падающей волны) теории и гидродинамического приближения [11–14]. Было показано, что в отсутствие эффектов диссипации, компонента электрического поля, параллельная градиенту неоднородности плазмы, вблизи критической плотности, где диэлектрическая проницаемость $\varepsilon \rightarrow 0$, имеет особенность порядка $1/\varepsilon$, а поперечная компонента характеризуется логарифмической особенностью. Конечное значение амплитуды электрического поля плазменного резонанса [13, 14] обеспечивается либо столкновительной диссипацией плазменных колебаний в случае холодной плазмы, либо выносом плазменных волн при учете тепловых эффектов в случае горячей плазмы. В работах [13, 14] был также вычислен коэффициент усиления поля и было дано качественное описание роли плазменного резонанса в процессе поглощения электромагнитного излучения неоднородной плазмой.

На основе модели [13, 14] авторы статей [15–17] разработали аналитическую теорию линейного резонансного поглощения соответственно для холодной [15, 16] и горячей плазмы [17]. Из теоретических подходов [15–17] следовало, что коэффициент резонансного поглощения G не зависит от температуры плазмы, частоты столкновений электронов и интенсивности поля накачки, а характеризуется зависимостью от единственного параметра $\rho \equiv (\omega_0 L/c)^{2/3} \sin^2 \theta$ с максимумом $G_m \approx 0.4$ при $\rho \approx 0.2$. Здесь θ — угол падения на неоднородную плазму с масштабом неоднородности в окрестности критической плотности L , c — скорость света в вакууме. Вследствие приближенности аналитических решений уравнений поля для оптимальных значений ρ количественные оценки эффективности поглощения в [15–17] оказались не совсем точны, что было продемонстрировано аналитически для холодной плазмы в пределе малых [18] и больших [19] углов падения лазера на плазму, и позже — методами численного решения волнового уравнения [20–22] для произвольных углов. Последовательное описание формы резонансной кривой $G(\rho)$ в [20, 22] позволило уточнить значения: $G_m \approx 0.5$ при $\rho \approx 0.5$. Кроме того, в [22] была продемонстрирована пренебрежимо слабая температурная зависимость коэффициента поглощения от температуры, что подтвердило общий вывод об определяющей роли параметра ρ для описания поглощения в линейном режиме. Отметим, что на существенное поглощение p -поляризованной электромагнитной волны в окрестности плазменного резонанса указывалось также в монографии [23].

Развитие аналитического подхода для холодной плазмы в [24] позволило значительно скорректиро-

вать решения [18, 19] в предельных случаях малых и больших углов падения, а в случае горячей плазмы [25] — получить решение в виде степенных рядов, обобщающих предыдущие результаты [17] на весь диапазон углов. В последующих аналитических исследованиях линейной конверсии излучения в неоднородной плазме уточнялась зависимость кривой коэффициента поглощения $G(\rho)$ в случае линейного профиля плотности плазмы [26], в пределе малых углов падения рассматривался профиль плотности с локальным ступенчатым скачком плотности в окрестности критики [27], исследовалась форма кривой $G(\rho)$ для параболического профиля [28–30].

Естественная логика развития лазерных технологий привела к тому, что в экспериментах по лазер-плазменному взаимодействию стало рутинным применение лазеров с интенсивностью, ставящей под сомнение применимость использования линейной теории резонансного поглощения. Рост интенсивности лазерного излучения привел к необходимости учитывать как нерелятивистские [4], так и релятивистские [5, 31–36] нелинейные эффекты, проявляющиеся в окрестности критической плотности плазмы. В работе [4] впервые аналитически был осуществлен выход за рамки теории возмущений [2, 3] путем точного учета в исходных уравнениях нелинейного (по амплитуде электрического поля) движения электронов, но в пренебрежении релятивистскими эффектами. При этом плазменный резонанс рассматривался применительно к задаче о генерации гармоник и квазистатических полей в неоднородной плазме, тогда как вопрос о поглощении на основной частоте оставался открытым. Поскольку сильная нелинейность существенно затрудняет аналитическое исследование, нелинейное резонансное поглощение изучается, в основном, методами численного моделирования [31, 32, 34, 37] или с использованием полуаналитических моделей [35], в которых полученные на первом этапе аналитическими методами упрощенные относительно исходных нелинейные уравнения далее исследуются численно. В численных подходах к решению таких задач широко применяется кинетическое описание на основе метода «частица в ячейке» (PIC) [31, 32, 34, 37]. Естественно, что численные методы затрудняют получение практически необходимых скейлингов от лазерно-плазменных параметров.

В работах [5, 34–36] было показано, что проявление релятивистских эффектов движения электронов за счет усиления плазменного поля в области плазменного резонанса имеет место даже в том случае, если напряженность падающего лазерного

поля остается существенно ниже релятивистской. Нелинейный плазменный резонанс качественно меняет процесс генерации целых гармоник [5], причем высшие гармоники, которые, согласно стандартной (слабонелинейной) теории возмущений [2,3], были экспоненциально малы, становятся существенно выше. Формирование достаточно медленно убывающих степенных спектров гармоник является следствием пространственно-временной модуляции релятивистских плазменных колебаний, что эквивалентно релятивистскому изменению эффективной массы электрона [36]. С таким эффектом авторы работ [34, 35] связывали возможность подавления резонансного поглощения с ростом лазерной плотности потока энергии, хотя последовательная теория нелинейного резонансного поглощения не была построена. Целью настоящей работы является построение аналитической теории резонансного поглощения в условиях сильной нелинейности, которая связана как с релятивистскими, так и с нерелятивистскими эффектами динамики электронов в окрестности критической плотности плазмы, что должно восполнить пробел, все еще существующий в теории.

Наш теоретический подход строится на основе линейного решения [24] для углов падения θ , при которых $\rho > 1$, с использованием формализма ренормгрупповых преобразований. В развиваемой здесь теории с учетом подходов работ [4, 36] рассмотрение ведется в рамках гидродинамического приближения, плазма считается холодной и бесстолкновительной, т. е. в исходных уравнениях столкновения и конечная температура электронов не учитываются, хотя конечное значение резонансно усиленного плазменного электрического поля обеспечивается введением ширины плазменного резонанса, определяемой либо малой частотой соударений электронов, либо выносом ленгмюровских волн благодаря малым тепловым эффектам. Кроме того, рассматриваются достаточно плавные градиенты плотности плазмы, что позволяет, как и в классической теории линейной трансформации [9], аппроксимировать плотность в окрестности плазменного резонанса линейной зависимостью от координаты и пренебречь отличием ленгмюровской частоты колебаний плазмы в окрестности критической плотности от частоты лазера.

Статья построена следующим образом. В разд. 2 для описания процесса поглощения лазерного излучения неоднородной плазмой сформулированы исходные уравнения, которые состоят из системы уравнений бесстолкновительной гидродинамики холодной электронной плазмы и уравнений Максвел-

ла. Для амплитуды отраженного от плазмы магнитного поля в вакууме на основной частоте получено уравнение с правой частью, содержащей в качестве источника излучения нелинейный ток, локализованный вблизи критической плотности плазмы. Применяя ренормгрупповой метод, развитый в [5], в разд. 3 нами построено решение этого уравнения с источником, определяющее амплитуду основной (первой) гармоники магнитного поля в вакууме, подробности вывода которой вынесены в Приложение А. В разд. 4 найдена нелинейная амплитуда магнитной составляющей электромагнитного поля в точке плазменного резонанса и проведена перенормировка функции источника, что в совокупности с результатами разд. 2 позволило получить самосогласованные выражения для амплитуды отраженного магнитного поля и коэффициента поглощения на основной частоте. Формулы, связанные с нахождением нелинейной амплитуды магнитной составляющей в точке резонанса, помещены в Приложение В. В разд. 3 также получено (подробности вычислений см. в Приложении С) приближенное аналитическое выражение для искомой нелинейной резонансной амплитуды магнитного поля и обоснована необходимость учета релятивистских эффектов движения электронов плазмы в области критической плотности при построении нелинейной теории резонансного поглощения лазерного излучения неоднородной плазмой, несмотря на нерелятивизм поля накачки. Показано, что пространственно-временная модуляция фазы релятивистских колебаний электронов [36] приводит к насыщению нелинейной амплитуды поля плазменного резонанса и подавлению резонансного поглощения, т. е. к уменьшению коэффициента поглощения с ростом плотности потока лазерной энергии. С учетом этого эффекта проведена корректировка обсуждавшейся ранее [5, 36] области применимости релятивистской гидродинамической модели плазменного резонанса. В заключительном разд. 5 кратко сформулированы результаты нелинейной теории резонансного поглощения и в качестве еще одного примера, для которого важен эффект нелинейности плазменного резонанса, обсуждается генерация квазистатического электрического поля при учете релятивизма плазменных волн в окрестности критической плотности неоднородной плазмы.

2. ОСНОВНЫЕ УРАВНЕНИЯ

Для описания процесса нелинейного отражения, поглощения и генерации гармоник p -поляризо-

ванной электромагнитной волны, которая падает на слабонеоднородную вдоль координаты x плазму под углом θ и характеризуется электрическим \mathbf{E} и магнитным \mathbf{B} полями с частотой ω_0 ,

$$\mathbf{B} = \frac{1}{2}\{0, 0, B_0(x)\} \exp(ik_y y - i\omega_0 t) + \text{c.c.},$$

$$\mathbf{E} = \frac{1}{2}\{E_{0x}(x), E_{0y}(x), 0\} \exp(ik_y y - i\omega_0 t) + \text{c.c.}, \quad (1)$$

$$k_y = k_0 \sin \theta, \quad k_0 = \omega_0/c,$$

в качестве исходных уравнений, запишем следующие уравнения бесстолкновительной гидродинамики холодной релятивистской электронной плазмы и уравнения Максвелла:

$$\partial_t \mathbf{p} + (\mathbf{v} \partial_{\mathbf{r}}) \mathbf{p} = e \left(\mathbf{E} + \frac{1}{c} [\mathbf{v} \mathbf{B}] \right),$$

$$\partial_t n_e + \text{div}(n_e \mathbf{v}) = 0,$$

$$\text{rot } \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \partial_t \mathbf{B}, \quad \text{rot } \mathbf{B} = \frac{1}{c} \partial_t \mathbf{E} + \frac{4\pi}{c} e n_e \mathbf{v}, \quad (2)$$

$$\text{div } \mathbf{B} = 0,$$

$$\text{div } \mathbf{E} = 4\pi (e n_e + e_i n_i),$$

$$\mathbf{p} \equiv m \mathbf{v} \gamma = \frac{m \mathbf{v}}{\sqrt{1 - \mathbf{v}^2/c^2}}.$$

Здесь m и e — масса и заряд электрона, n_e , \mathbf{v} , \mathbf{p} — плотность, скорость и импульс электронов плазмы; \mathbf{E} и \mathbf{B} — напряженности электрической и магнитной составляющих p -поляризованного электромагнитного излучения, характеризуемого наличием компоненты электрического поля в (1) в направлении градиента неоднородности плазмы. Кроме того, ионы рассматриваются в качестве неподвижного нейтрализующего фона, а эффекты теплового движения и столкновений электронов, не включенные в уравнения (2), считаются малыми, хотя их роль в регуляризации особенности плазменного резонанса будет учтена в соответствии с ренормгрупповой процедурой построения нелинейного решения [5, 36].

Полагая отличными от нуля x - и y -компоненты скорости электронов и электрического поля и z -компоненту магнитного поля, получим из (2) после исключения плотности электронов следующую систему уравнений:

$$\begin{aligned} & \gamma (\partial_t v + a v \partial_x v + a u \partial_y v) + \\ & + \frac{a^2 \gamma^3}{c^2} [v u (\partial_t u + a v \partial_x u + a u \partial_y u) + \\ & + v^2 (\partial_t v + a v \partial_x v + a u \partial_y v)] = P + (a u/c) R, \\ & \gamma (\partial_t u + a v \partial_x u + a u \partial_y u) + \\ & + \frac{a^2 \gamma^3}{c^2} [v u (\partial_t v + a v \partial_x v + a u \partial_y v) + \\ & + u^2 (\partial_t u + a v \partial_x u + a u \partial_y u)] = Q - (a v/c) R, \\ & \partial_t P + a v \partial_x P + a v \partial_y Q - c \partial_y R + \omega_L^2 v = 0, \\ & \partial_t Q + a u \partial_x P + a u \partial_y Q + c \partial_x R + \omega_L^2 u = 0, \\ & \partial_t R + c \partial_x Q - c \partial_y P = 0. \end{aligned} \quad (3)$$

В этой системе $a = -2e|B_1(0)| \sin \theta / m \omega_0^2 L$ — безразмерная постоянная, пропорциональная амплитуде магнитного поля $|B_1(0)|$ в точке плазменного резонанса $x = 0$; $B_1(0)$ — комплексная амплитуда фурье-компоненты магнитного поля в точке $x = 0$ на частоте лазера ω_0 :

$$\begin{aligned} B_1(0) &= |B_1(0)| \exp[i \arg B_1(0)] = \\ &= \frac{m \omega_0^2 L a}{2|e| \sin \theta} \exp[i \arg B_1(0)]. \end{aligned} \quad (4)$$

Функции $v = v_x/a$, $u = v_y/a$ описывают нормированные значения компонент скорости электронов;

$$\gamma = 1/\sqrt{1 - (a^2/c^2)(v^2 + u^2)};$$

$P = e E_x / m a$, $Q = e E_y / m a$, $R = e B_z / m a$ — нормированные значения компонент электрического (E_x, E_y) и магнитного (B_z) полей, $\omega_L \equiv \omega_L(x) = (4\pi e^2 n_0 / m)^{1/2}$ — электронная ленгмюровская частота плазмы с плотностью $n_0(x)$, которая в окрестности плазменного резонанса $x = 0$ аппроксимируется линейной зависимостью от координаты x ,

$$n_0(x) = (1 + x/L) n_c,$$

где критическая плотность $n_c = m \omega_0^2 / 4\pi e^2$ и L — характерный масштаб неоднородности плотности. Отметим, что в рассматриваемом нами случае плавной неоднородности плазмы, $L \gg \Delta, 1/k_0$, где Δ — ширина плазменного резонанса, линейная зависимость от координаты x справедлива в окрестности резонанса для любого монотонного профиля плотности. Условие слабой неоднородности плазмы $k_0 L \gg 1$ является также критически важным для эффективного резонансного поглощения. Заметим, что масштаб неоднородности плазмы может изменяться в результате неучитываемых разлета плазмы и действия лазерной ponderomotorной силы [22, 31, 38–40]. В данной работе мы исходим из того, что такое изменение профиля плотности можно

учитывать через параметр L , предполагая, однако, что условия слабой неоднородности плазмы не нарушаются.

Представляя входящие в (3) величины скоростей и полей v, u, P, Q, R в виде разложения в ряд по гармоникам падающей волны (1), поставим в соответствие каждой из этих величин ее фурье-компоненту v_n, u_n, P_n, Q_n, R_n :

$$\{v, u, P, Q, R\} = \sum_{-\infty}^{\infty} \{v, u, P, Q, R\}_n \times \exp[-in(\omega_0 t - k_y y)]. \quad (5)$$

Используя разложение (5), из системы уравнений (3) получим следующее уравнение для n -й гармоники магнитного поля:

$$\begin{aligned} \partial_{xx} R_n - \frac{\partial_x \varepsilon_n}{\varepsilon_n} \partial_x R_n + \left(\frac{n\omega_0}{c}\right)^2 (\varepsilon_n - \sin^2 \theta) R_n = \\ = \frac{ian\omega_0}{c^2} \{v(\partial_x P + \partial_y Q)\}_n \sin \theta + \\ + \frac{\omega_L^2}{c^2} \left\{ av\partial_x(\gamma v) + au\partial_y(\gamma v) + \partial_t(v(\gamma - 1)) - \frac{au}{c} R \right\}_n - \\ - \frac{a}{c} \left\{ \partial_x(u(\partial_x P + \partial_y Q)) \right\}_n + \frac{a\partial_x \varepsilon_n}{c\varepsilon_n} \left\{ u(\partial_x P + \partial_y Q) \right\}_n + \\ + \frac{i\omega_L^2}{cn\omega_0} \partial_x \left\{ av\partial_x(\gamma u) + au\partial_y(\gamma u) + \partial_t(u(\gamma - 1)) + \frac{au}{c} R \right\}_n - \\ - \frac{in\omega_0 \varepsilon_n}{c} \partial_x \left(\frac{\varepsilon_n - 1}{\varepsilon_n} \right) \left\{ av\partial_x(\gamma u) + au\partial_y(\gamma u) + \right. \\ \left. + \partial_t(u(\gamma - 1)) + \frac{av}{c} R \right\}_n. \quad (6) \end{aligned}$$

Здесь $\varepsilon_n = 1 - (\omega_L^2)/(n^2\omega_0^2)$ — комплексная диэлектрическая проницаемость плазмы на частоте $n\omega_0$. Правая часть уравнения (6) отвечает нелинейному источнику генерации гармоник в плазме. В отсутствие нелинейных эффектов (при $a \rightarrow 0$) этот источник исчезает и уравнение (6) описывает свободное распространение в неоднородной плазме p -поляризованной электромагнитной волны с частотой $n\omega_0$.

В интересующем нас случае магнитной составляющей поля на частоте лазера ω_0 примем во внимание, что при $n = 1$ в (6) наибольший вклад в источник дают резонансные слагаемые порядка $1/\varepsilon_1$, где $\varepsilon_1 = (i\Delta - x)/L$. Далее, из результатов работ [2, 4, 13] следует, что наибольший вклад в нелинейные эффекты плазменного резонанса определяется x -компонентой электрического поля и скорости электронов. Кроме того, зависимость электромагнитных полей и скоростей электронов от координаты x вдоль градиента плотности вблизи плазменного резонанса обратно пропорциональна величине

ширины плазменного резонанса $\Delta \ll L$ и оказывается существенно сильнее зависимости от поперечной координаты y , которая пропорциональна k_y . Наконец, в рассматриваемом случае слабонеоднородной плазмы с характерным масштабом неоднородности $L \gg 1/k_0$ можно пренебречь вкладами, пропорциональными градиенту неоднородности в правой части уравнений (6). Собирая перечисленные условия, приходим к совокупности неравенств, задающих область применимости модели:

$$k_0 L \gg 1, \quad k_y \Delta \ll 1, \quad \Delta \ll L. \quad (7)$$

С учетом сделанных предположений уравнение (6) для случая $n = 1$ преобразуется к виду

$$\begin{aligned} \partial_{xx} R_1 - \frac{\partial_x \varepsilon_1}{\varepsilon_1} \partial_x R_1 + \left(\frac{\omega_0}{c}\right)^2 (\varepsilon_1 - \sin^2 \theta) R_1 = \\ = -\frac{4\pi}{c} \left\{ \frac{a}{4\pi} \text{rot } \mathbf{J}_1 \right\}_z + \frac{a/c}{x - i\Delta} \times \\ \times \left[u\partial_x P - i\omega_0 v\partial_x(\gamma u) - \frac{\omega^2}{a}(\gamma - 1)u \right]_1, \quad (8) \end{aligned}$$

где компоненты вектора \mathbf{J}_1 определяются выражением

$$\begin{aligned} \mathbf{J}_1 = \left\{ v\partial_x P - i\omega_0 v\partial_x(\gamma v) - \frac{\omega_0^2}{a}(\gamma - 1)v, \right. \\ \left. u\partial_x P - i\omega_0 v\partial_x(\gamma u) - \frac{\omega_0^2}{a}(\gamma - 1)u, \quad 0 \right\}_1. \quad (9) \end{aligned}$$

В (8) положено $\omega_L = \omega_0$, т.е. пренебрегается зависимостью частоты ω_L от координаты x . Такое приближение оправдано для слабонеоднородной плазмы, когда область локализации поля плазменного резонанса мала по сравнению с характерным масштабом неоднородности плазмы L . Из уравнения (8) и соотношения (9) следует, что первая гармоника магнитного поля в вакууме определяется электрическим полем и скоростью электронов в области плазменного резонанса, которые были найдены нами ранее [36].

3. АМПЛИТУДА МАГНИТНОГО ПОЛЯ В ВАКУУМЕ

Решение неоднородного уравнения (8) записывается через систему фундаментальных решений однородного уравнения Ψ^+ и Ψ^- в следующем виде:

$$\begin{aligned}
 R_1(x) &= \alpha_1^+ \Psi_1^+(x) + \alpha_1^- \Psi_1^-(x) + \\
 &\quad + \int_{-\infty}^x d\xi G(x, \xi) f_1(\xi), \\
 G(x, \xi) &= -\frac{\Psi_1^+(x)\Psi_1^-(\xi) - \Psi_1^+(\xi)\Psi_1^-(x)}{\Psi_1^+(\xi)\Psi_1^{\prime-}(\xi) - \Psi_1^{\prime+}(\xi)\Psi_1^-(\xi)}, \\
 f_1(x) &= \frac{a}{c} \times \\
 &\quad \times \left\{ ik_y \left(vP_x - i\omega_0 v(\gamma v)_x - \frac{\omega_0^2}{a}(\gamma - 1)v \right) + \right. \\
 &\quad + \frac{1}{x - i\Delta} \left[uP_x - i\omega_0 v(\gamma u)_x - \frac{\omega_0^2}{a}(\gamma - 1)u \right] - \\
 &\quad \left. - \left[uP_x - i\omega_0 v(\gamma u)_x - \frac{\omega_0^2}{a}(\gamma - 1)u \right]_x \right\}, \tag{10}
 \end{aligned}$$

где $G(x, \xi)$ — функция Грина, а функции Ψ_1^+ и Ψ_1^- удовлетворяют уравнению

$$\begin{aligned}
 \partial_{xx} \Psi_1^\pm - \frac{\partial_x \varepsilon_1}{\varepsilon_1} \partial_x \Psi_1^\pm + \\
 + \left(\frac{\omega_0}{c} \right)^2 (\varepsilon_1 - \sin^2 \theta) \Psi_1^\pm = 0. \tag{11}
 \end{aligned}$$

В формулах (10) α_1^\pm — константы, определяемые граничными условиями для уравнения (8) применительно к решению (10). Граничные условия, в свою очередь, следуют из вида магнитного поля $R_1(x)$ при $x \rightarrow \pm\infty$:

$$\begin{aligned}
 R_1 &= \tilde{C}_1^+ \exp\left(i\frac{\omega_0}{c}(x + \infty)\cos\theta\right) + \\
 &\quad + \tilde{C}_1^- \exp\left(-i\frac{\omega_0}{c}(x + \infty)\cos\theta\right), \quad x \rightarrow -\infty, \tag{12} \\
 R_1 &= 0, \quad x \rightarrow \infty,
 \end{aligned}$$

где комплексные амплитуды \tilde{C}_1^+ и \tilde{C}_1^- отвечают соответственно падающей и отраженной волнам.

Учитывая, что источник излучения $f_1(x)$ локализован в окрестности плазменного резонанса $x \simeq 0$, для углов θ , удовлетворяющих условию

$$(\omega L/c)^{2/3} \sin^2 \theta \gg 1,$$

найдем амплитуду \tilde{C}_1^- (см. Приложение А):

$$\begin{aligned}
 \tilde{C}_1^- &= -i \exp\left(2i\frac{\omega_0}{c}\mathcal{L}_+(-\infty)\right) \times \\
 &\quad \times \frac{1 - \frac{1}{2} \exp\left(\frac{2\omega_0}{c}\mathcal{L}_+(0)\right)}{1 + \frac{1}{2} \exp\left(\frac{2\omega_0}{c}\mathcal{L}_+(0)\right)} \tilde{C}_1^+ - \\
 &\quad - \frac{i \exp\left(\mathcal{L}_+(0) + i\mathcal{Z}\right)}{1 + \frac{1}{2} \exp\left(\frac{2\omega_0}{c}\mathcal{L}_+(0)\right)} \left(\frac{cL}{2\pi\omega_0|\cos\theta|k_y^2}\right)^2 \times \\
 &\quad \times \int_{-\infty}^{\infty} d\xi \frac{f_1(\xi)}{\xi - i\Delta}. \tag{13}
 \end{aligned}$$

До сих пор мы рассматривали нормированную на безразмерную амплитуду a величину поля R (и соответствующую ей амплитуду \tilde{C}_1^-), однако конечная цель заключается в получении формул для магнитного поля B_z (и амплитуды C_1^-). Уравнение для фурье-компоненты B_1 получается из уравнения для R_1 после умножения на (am_e/e) . При этом связь между амплитудами \tilde{C}_1^- и C_1^- такая же, как между R_1 и B_1 , поэтому при переходе к формуле для фурье-компоненты магнитного поля B_z на основной частоте \tilde{C}_1^- следует домножить на (am_e/e) .

Окончательно получаем выражение для амплитуды первой гармоники магнитного поля в вакууме:

$$\begin{aligned}
 C_1^- &= \Omega_1 C_1^+ + \frac{m_e}{e} \frac{\omega_0^3 \Delta}{(2\pi)^{3/2}} \times \\
 &\quad \times \left(\frac{L}{c\omega_0|\cos\theta|}\right)^{1/2} \Omega_2 \mathcal{I}. \tag{14}
 \end{aligned}$$

Здесь

$$\begin{aligned}
 \Omega_1 &= R_L^{1/2} \exp\left[2i\frac{\omega_0}{c}\mathcal{L}_+(-\infty) - i\frac{\pi}{2}\right], \\
 \Omega_2 &= (G_L/2)^{1/2} \exp[i\mathcal{Z} + i \arg B_1(0) - i\pi], \tag{15}
 \end{aligned}$$

где $R_L = |C_{1L}^-/C_1^+|^2$, $G_L = 1 - R_L$ — коэффициенты соответственно отражения и поглощения в линейной теории, а C_{1L}^- — амплитуда магнитного поля отраженной волны в линейной теории:

$$\begin{aligned}
 R_L &= \left(\frac{1 - \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{4\omega_0 L}{3c} \sin^3 \theta\right)}{1 + \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{4\omega_0 L}{3c} \sin^3 \theta\right)}\right)^2, \\
 G_L &= \frac{2 \exp\left(-\frac{4\omega_0 L}{3c} \sin^3 \theta\right)}{\left(1 + \frac{1}{2} \exp\left(-\frac{4\omega_0 L}{3c} \sin^3 \theta\right)\right)^2}. \tag{16}
 \end{aligned}$$

Интеграл \mathcal{I} и входящие в него безразмерные функции и переменные

$$P_0 = \frac{a}{\Delta\omega_0^2}P, \quad v_1 = \frac{a}{\Delta\omega_0}v, \quad x_0 = \frac{x}{\Delta},$$

найденные нами при построении структуры электрического поля релятивистского плазменного резонанса [36], имеют вид (см. Приложение А)

$$\begin{aligned} \mathcal{I} = & \int_{-\infty}^{\infty} dl \int_0^{2\pi} d\chi \frac{v_1 e^{i\tau(\chi, l)}}{x_0 - i} [\partial_\chi \tau \partial_l (P_0 - i\gamma v_1) - \\ & - \partial_l \tau \partial_\chi (P_0 - i\gamma v_1) - \\ & - (\partial_\chi \tau \partial_l x_0 - \partial_l \tau \partial_\chi x_0) (\gamma - 1)], \\ P_0 = & -\frac{A}{1+l^2} (l \cos \chi + \sin \chi), \\ v_0 = & -\frac{A}{1+l^2} (l \sin \chi - \cos \chi), \quad \gamma = 1 + \frac{B^2 v_0^2}{2}, \\ x_0 = & l - P_0, \quad v_1 = v_0 \frac{(1 + \frac{1}{4} B^2 v_0^2)^{1/2}}{1 + \frac{1}{2} B^2 v_0^2}, \\ \tau(\chi, l) = & \chi - \left(\zeta E(\varphi; k) - \frac{2}{\zeta} F(\varphi; k) - \varphi \right), \\ \zeta = & \sqrt{4 + B^2(v_0^2 + P_0^2)}, \quad \varphi = \arcsin \frac{P_0}{\sqrt{v_0^2 + P_0^2}}, \\ k = & \sqrt{\frac{B^2(v_0^2 + P_0^2)}{4 + B^2(v_0^2 + P_0^2)}}. \end{aligned} \quad (17)$$

Здесь

$$A = \frac{aL^2}{\Delta^2}, \quad B = \frac{\Delta\omega_0}{c};$$

$F(\varphi; k), E(\varphi; k)$ — эллиптические интегралы соответственно первого и второго рода [41, 42], а ширина плазменного резонанса Δ определяется либо тепловым движением электронов с тепловой скоростью V_T , либо малой частотой соударений ν частиц в плазме:

$$\Delta = \max \{ \nu L / \omega_0; \quad (3V_T^2 L / \omega_0^2)^{1/3} \}. \quad (18)$$

Из вида (14) следует, что амплитуда отраженного магнитного поля представляется суммой линейного, C_{1L}^- , т. е. не зависящего от a , и нелинейного, C_{1N}^- , слагаемых:

$$C^- = C_{1L}^- + C_{1N}^-,$$

где зависимость C_{1N}^- от лазерной интенсивности задается интегралом \mathcal{I} . В линейной теории безразмерная амплитуда $a = a_L$ определяется соотношением, связывающим амплитуду магнитного поля в точке

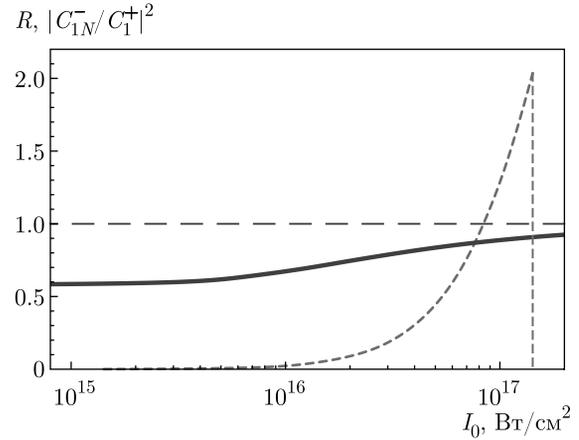


Рис. 1. Нелинейный коэффициент отражения на основной частоте после процедуры перенормировки (синяя кривая) и величина $|C_{1N}^- / C_1^+|^2$ без учета перенормировки (штриховая кривая) в зависимости от интенсивности лазерного поля I_0 для температуры $T = 2$ кэВ и масштаба неоднородности плазмы $L = 30\lambda$ при угле падения лазерного излучения $\theta_{min} = 10^\circ$. Штриховая вертикальная прямая соответствует границе опрокидывания плазменной волны в точке резонанса в случае использования линейной амплитуды a_L

плазменного резонанса с амплитудой падающей волны через коэффициент отражения R_L [17],

$$a_L = \left| \frac{cB_0^2 e^2}{\pi m^2} \frac{|\cos \theta|}{\omega_0^5 L^3} (1 - R_L) \right|^{1/2}, \quad B_0 = 2C_1^+. \quad (19)$$

Ниже, в случаях подстановки конкретных параметров лазера и плазмы, для определенности будем вести обсуждение на языке лазерной интенсивности I_0 [Вт/см²] Nd-лазера с длиной волны $\lambda = 1.06$ мкм, масштаба неоднородности L [λ], выраженного в длинах волны лазерного излучения, температуры плазмы T [кэВ], угла падения лазерного излучения θ и параметра $\rho \equiv (\omega_0 L / c)^{2/3} \sin^2 \theta$. Исходя из условия построения нелинейного решения уравнения (8) с помощью линейных решений однородного уравнения, которые существуют при не слишком малых углах, значение параметра

$$\rho_{min} \equiv (\omega L / c)^{2/3} \sin^2 \theta_{min} = 1$$

может считаться предельным для аналитической теории, а θ_{min} — минимально допустимым углом падения лазерного излучения на плазму при заданных ω_0 и L .

Легко проверить, что использование в \mathcal{I} величины $a_L \propto B_0$ вместо a приводит к завышенным значениям C_{1N}^- при больших интенсивностях лазера (как это показано на рис. 1), естественно, при таких зна-

чениях интенсивности, которые ограничены условием отсутствия опрокидывания плазменной волны в резонансе. Неограниченный рост $C_{1N}^-(a_L)$ приводит к тому, что, начиная с некоторого значения лазерной интенсивности, величина $C_{1N}^-(a_L)$ превышает амплитуду поля накачки, что физически невозможно. Такое поведение нелинейного вклада связано с неправомерным использованием в источнике $f_1(x)$ амплитуды a , задаваемой в линейном приближении (19), которая не учитывает нелинейной связи между амплитудой плазменного поля в точке $x = 0$ и амплитудой поля накачки. Этот факт свидетельствует о необходимости построения самосогласованной нелинейной теории отражения лазерного излучения неоднородной плазмой с отличной от (19) амплитудой магнитного поля в точке резонанса $a \neq a_L$, учитывающей нелинейную зависимость $|B_1(0)|$ от C_1^+ , и последующей перенормировкой функции источника $f_1(x)$. Как будет показано ниже, неограниченный рост нелинейной части коэффициента отражения $C_{1N}^-(a)$ в результате такой перенормировки сменяется насыщением. Зависимость полного нелинейного коэффициента отражения на основной частоте $R = |C_1^-/C_1^+|^2$ от лазерной интенсивности после перенормировки на нелинейную амплитуду a показана на рис. 1 синей кривой, а выявлению аналитической связи между $B_1(0)$ и C_1^+ и записи формулы, которая и отвечает насыщению нелинейного роста $C_{1N}^-(a)$ на рис. 1, посвящен следующий раздел.

4. ПЕРЕНОРМИРОВКА АМПЛИТУДЫ МАГНИТНОГО ПОЛЯ В РЕЗОНАНСЕ И НЕЛИНЕЙНЫЙ КОЭФФИЦИЕНТ ОТРАЖЕНИЯ

Следуя схеме, аналогичной схеме вычисления амплитуды \tilde{C}_1^- , получим выражение для магнитного поля в точке плазменного резонанса (см. Приложение В):

$$R_1(0) = \left(\frac{2c|\cos\theta|}{\pi\omega_0 L \sin^2\theta} \right)^{1/2} \times \times \frac{\exp[\mathcal{L}_+(0) + i\mathcal{Z}]}{1 + \frac{1}{2} \exp\left[\frac{2\omega_0}{c}\mathcal{L}_+(0)\right]} \tilde{C}_1^+ \times \times \frac{i/\pi k_y^2}{1 + \frac{1}{2} \exp\left[\frac{2\omega_0}{c}\mathcal{L}_+(0)\right]} \int_{-\infty}^{\infty} d\xi \frac{f_1(\xi)}{\xi - i\Delta}. \quad (20)$$

Переходя от амплитуды \tilde{C}_1^- к амплитуде C_1^- путем домножения \tilde{C}_1^- на (am_e/e) и прибегая к нормиров-

ке (4), но уже вне рамок линейного приближения для амплитуды в резонансе (19), перепишем (20) в виде

$$\frac{\omega_0^2}{2} \left(aL - \frac{\Delta\mathcal{I}}{\pi^2 \left(1 + \frac{1}{2} \exp\left[\frac{2\omega_0}{c}\mathcal{L}_+(0)\right]\right)} \right) \times \times \exp[i \arg B_1(0)] = \frac{|e|}{m} |C_1^+| \left(\frac{2c|\cos\theta|}{\pi\omega_0 L} \right)^{1/2} \times \times \frac{\exp[\mathcal{L}_+(0) + i\mathcal{Z} + i \arg C_1^+]}{1 + \frac{1}{2} \exp\left[\frac{2\omega_0}{c}\mathcal{L}_+(0)\right]}. \quad (21)$$

Или, что то же самое, на языке безразмерных переменных (амплитуд) $A = aL^2/\Delta^2$ и $A_L = a_L L^2/\Delta^2$:

$$\left(A - \frac{L/\Delta}{2\pi^2} \left(1 + R_L^{1/2} \right) \mathcal{I} \right) \exp[i \arg B_1(0)] = = A_L \exp[i\mathcal{Z} + i \arg C_1^+]. \quad (22)$$

Поскольку интеграл \mathcal{I} (17) является комплексной функцией амплитуды a , т.е. безразмерной амплитуды A , выражение (22) представляет собой нелинейное трансцендентное комплексное уравнение для безразмерной амплитуды магнитного поля в точке плазменного резонанса как функции линейной амплитуды $A = A(A_L)$, а значит и как функции амплитуды падающей волны $A = A(C_1^+)$. Вычисление A из (22) решает поставленную задачу отыскания нелинейной связи амплитуды магнитного поля в точке $x = 0$ с амплитудой поля накачки и задачу перенормировки функций в (17) с учетом найденной связи.

Комплексное уравнение (22) эквивалентно следующим двум уравнениям для модулей и аргументов комплексных функций в правой и левой частях (22):

$$|F(A)| = A_L, \quad \phi + \phi_1 = \mathcal{Z} + \phi_0, \quad (23)$$

где

$$F(A) = A - \frac{L/\Delta}{2\pi^2} \left(1 + R_L^{1/2} \right) \mathcal{I}, \quad (24)$$

$$\phi = \arg F(A), \quad \phi_0 = \arg C_1^+, \quad \phi_1 = \arg B_1(0).$$

Для вычисления интеграла (17) и решения уравнения (23) для величины A использовался пакет компьютерной алгебры "Wolfram Mathematica" [43].

На рис. 2 представлены зависимости нелинейной амплитуды A от амплитуды по линейной теории A_L

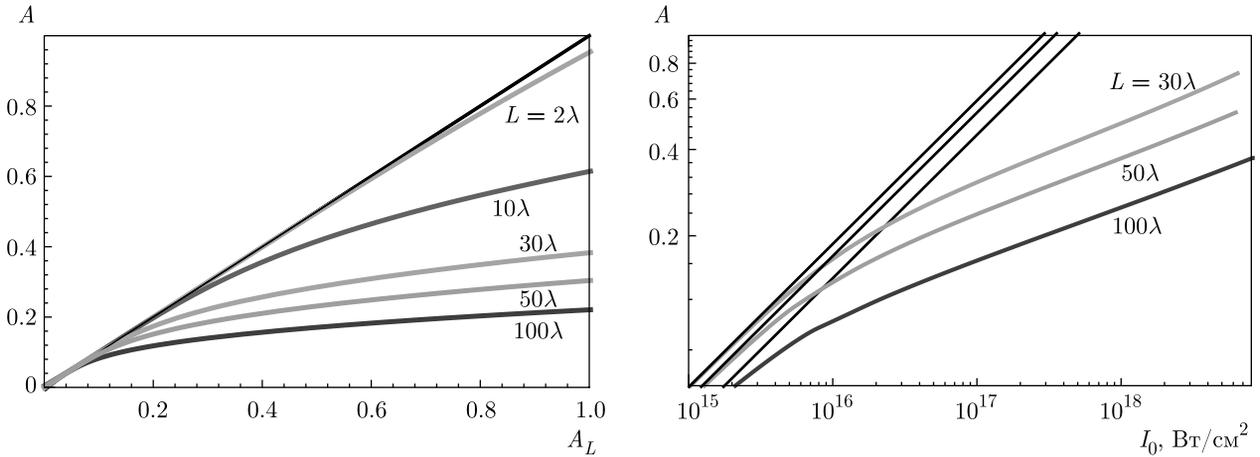


Рис. 2. Зависимости нелинейной амплитуды A от амплитуды, задаваемой линейным приближением A_L (слева) и от плотности потока энергии лазерного излучения I_0 (справа), вычисленные для электронной температуры плазмы $T = 2$ кэВ, разных масштабов неоднородности L и соответствующих им углов падения лазера на плазму $\theta = \theta_{min}$. Черная биссектриса (слева) и черные прямые (справа) отвечают пределу линейной теории

для пяти значений масштаба неоднородности L (слева) и подобные зависимости A от плотности потока энергии лазерного излучения I_0 для трех значений масштаба неоднородности L (справа). Температура плазмы T здесь фиксирована, а углы падения равны минимальным $\theta = \theta_{min}$ при соответствующих L . Нелинейность в области резонанса приводит к падению амплитуды поля в точке $x = 0$ в сравнении с результатом линейной теории, и наблюдается эффект насыщения — замедление роста амплитуды резонансного поля с ростом амплитуды поля накачки. В случае слабонеоднородной плазмы, когда $L \simeq (10 - 100)\lambda$, отличие A от A_L с увеличением лазерной интенсивности растет весьма существенно, тогда как при сравнительно более резких градиентах неоднородности $L \simeq \lambda$ отличие A от амплитуды A_L в линейной теории слабо заметно.

Перенормировка амплитуды влечет за собой изменение границ применимости рассматриваемой здесь гидродинамической модели в сравнении с предыдущими результатами [5], которые были получены в рамках теории плазменного резонанса с учетом релятивистских эффектов движения электронов плазмы, но с использованием линейной связи (19) амплитуды магнитной компоненты электромагнитного поля в точке $x = 0$ с амплитудой поля накачки. Область применимости нашей теории в гидродинамическом смысле определяется опрокидыванием плазменной волны в точке резонанса [36], которое происходит при достижении лазерной плотностью потока энергии определен-

ного предельного значения. Падение резонансной амплитуды в результате перенормировки сдвигает это пороговое значение в область более высоких лазерных интенсивностей. Рисунок 3, на котором приведены границы опрокидывания на плоскости (T, I_0) для разных значений масштаба неоднородности плазмы, подтверждает вывод о расширении границ применимости построенной здесь теории в сторону максимально возможной интенсивности лазерного поля, при которой формулы используемой модели бесстолкновительной гидродинамики холодной плазмы, описывающие физические величины, остаются однозначными. Поскольку, как было показано выше, существенное отличие нелинейной амплитуды от линейной наблюдается при плавных градиентах плотности плазмы $L \simeq (10 - 100)\lambda$, то и расширение области применимости гидродинамической модели оказывается в этом случае наиболее заметным и сдвигает границу опрокидывания в область релятивистских лазерных интенсивностей далеко за пределы границы, предсказываемой нелинейной нерелятивистской теорией [4] (зеленая пунктирная кривая). В случае же более резкого градиента неоднородности (случай $L = 2\lambda$ на рис. 3) положения границ опрокидывания различаются несущественно. Заметим также, что условие опрокидывания, полученное в [4], которому соответствует зеленая пунктирная кривая, совпадает с хорошо известным условием $k_p e E_p / m \omega_p^2 = 1$, где $k_p = (\lambda_D^2 L)^{-1/3}$, $\omega_p \equiv \omega_L$ и E_p — электрическое поле плазмы (см., например, [44]).

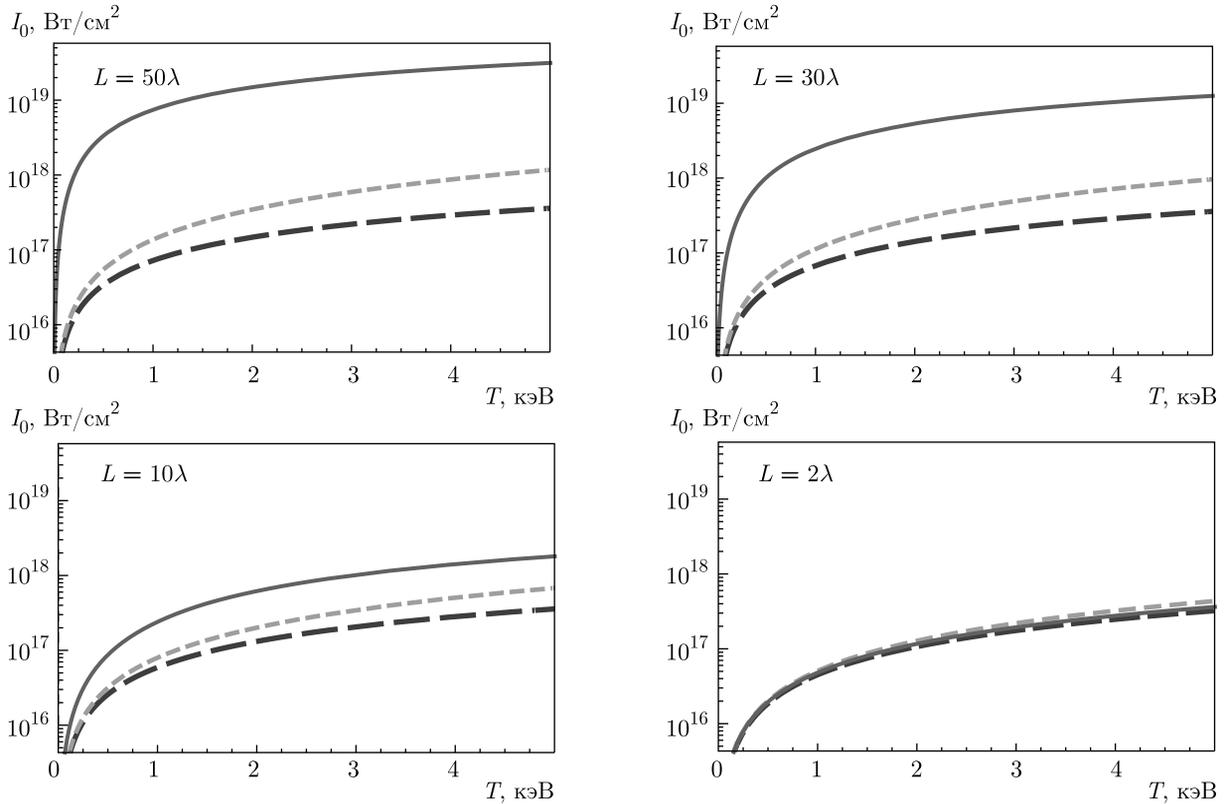


Рис. 3. Области применимости теории на плоскости параметров (T, I_0) для разных значений L . Сплошная красная кривая обозначает границу опрокидывания в релятивистской гидродинамике с учетом нелинейной перенормировки амплитуды в резонансе. Синяя штриховая линия отвечает релятивистской границе опрокидывания, но без учета нелинейной перенормировки. Зеленая пунктирная кривая соответствует порогу опрокидывания в нерелятивистской теории. Углы падения всюду равны минимальным $\theta = \theta_{min}$ при соответствующих L

Подставляя интеграл \mathcal{I} , найденный из первого уравнения (23), в C_1^- (14), с учетом равенства фаз из второго уравнения (23) получим формулу для амплитуды отраженного от плазмы магнитного поля на основной частоте:

$$C_1^- = -iC_1^+ \exp\left(2i\frac{\omega_0}{c}\mathcal{L}(-\infty)\right) \times \left\{ R_L^{1/2} + \left(1 - R_L^{1/2}\right) \left[1 - \frac{A}{A_L} e^{-i\phi}\right] \right\}. \quad (25)$$

Выражение (25) учитывает нелинейную перенормировку амплитуды поля в плазменном резонансе, которая заключается в переходе от амплитуды A_L в линейной теории отражения к амплитуде A , вычисляемой из (23). Тогда коэффициент отражения запишется в виде

$$R = \left| \frac{C_1^-}{C_1^+} \right|^2 = \left| R_L^{1/2} + \left(1 - R_L^{1/2}\right) \left[1 - \frac{A}{A_L} e^{-i\phi}\right] \right|^2. \quad (26)$$

Вычисление интеграла \mathcal{I} (17) как численным, так и аналитическим методами (см. Приложение С) показывает, что он представляет собой чисто мнимую величину. Поэтому из (23) и (24) вытекают равенства

$$\phi = \arg F(A) = \arccos \frac{A}{|F(A)|} = \arccos \frac{A}{A_L}, \quad (27)$$

$$\cos \phi = A/A_L,$$

которые позволяют записать коэффициент отражения в более компактной форме. Цепочка тождественных преобразований дает

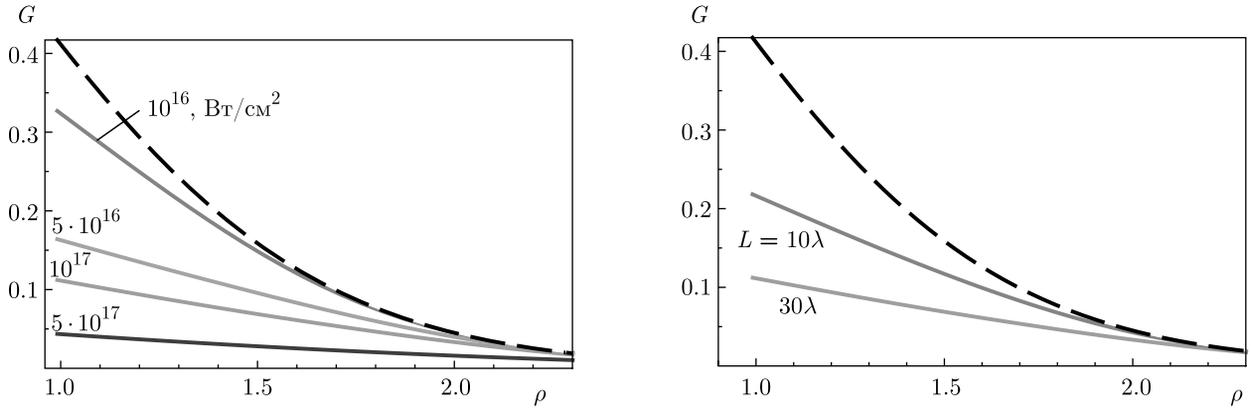


Рис. 4. Зависимости нелинейного коэффициента поглощения от углового параметра. Слева: графики построены при заданных значениях температуры плазмы $T = 2$ кэВ и масштаба неоднородности плазмы $L = 30\lambda$ для различных интенсивностей лазера (сплошные цветные линии). Справа: лазерная интенсивность $I_0 = 5 \cdot 10^{17}$ Вт/см², а разные цвета сплошных кривых отвечают различным масштабам неоднородности плазмы. Штриховая черная кривая соответствует коэффициенту поглощения в линейной теории

$$\left| R_L^{1/2} + (1 - R_L^{1/2}) \left[1 - \frac{A}{A_L} (\cos \phi - i \sin \phi) \right] \right|^2 = 1 - \left(\frac{A}{A_L} \right)^2 (1 - R_L). \quad (28)$$

Окончательно получаем нелинейные коэффициенты отражения R и поглощения G :

$$R = 1 - \left(\frac{A}{A_L} \right)^2 (1 - R_L), \quad G = \left(\frac{A}{A_L} \right)^2 G_L. \quad (29)$$

Формулы (29) очевидным образом демонстрируют предельный переход в линейную теорию при $A \rightarrow A_L$, т. е. верхнее ограничение коэффициентов отражения R и поглощения G их предельными значениями R_L и G_L . Уменьшение коэффициента резонансного поглощения с ростом лазерной плотности потока энергии показано на рис. 4 (слева), где представлены зависимости G от углового параметра ρ при фиксированных температуре плазмы и масштабе неоднородности. Рисунок 4 (справа) демонстрирует, как G уменьшается при переходе к слабонеоднородной плазме, если зафиксировать лазерную интенсивность.

Исследуем интеграл (17) аналитически и покажем, что он отличен от нуля только в случае учета релятивистской нелинейности. В работе [36], посвященной построению теории релятивистского плазменного резонанса, было показано, что параметры A и B отвечают вкладам соответственно нерелятивистской и релятивистской электронной нелинейности. В условиях только нерелятивистской нелинейности при конечных значениях параметра A наряду

с $c = \infty$ и $B = 0$ интеграл (17) строго обращается в нуль (см. Приложение С):

$$\mathcal{I}_{|c=\infty} = \mathcal{I}_0 = 0. \quad (30)$$

При этом из (23) и (29) получаем $A = A_L$ и $R = R_L$. Следовательно, в нерелятивистском пределе нелинейный вклад в коэффициент отражения отсутствует и справедлива линейная нормировка (19). Поскольку в нерелятивистском пределе равенство (30) выполняется строго, то и отличие R от R_L возникает только при учете релятивистской нелинейности плазменных волн.

Приближенное аналитическое вычисление \mathcal{I} при малых A и конечных значениях B дает (см. Приложение С)

$$\mathcal{I} \approx \mathcal{I}_1 = -\frac{3i\pi^2}{32} A^3 B^2. \quad (31)$$

Подставляя (31) в (23), приходим к уравнению для амплитуды A :

$$A^2 + \left(\frac{3B^2(L/\Delta)}{64} \right)^2 (1 + R_L^{1/2})^2 A^6 = A_L^2, \quad (32)$$

сводимому к кубическому уравнению в канонической форме

$$y^3 + py + q = 0, \quad p = \left(\frac{64(\Delta/L)}{3B^2(1 + R_L^{1/2})} \right)^2, \quad (33)$$

$$q = -pA_L^2,$$

вещественное решение которого определяет квадрат искомой амплитуды:

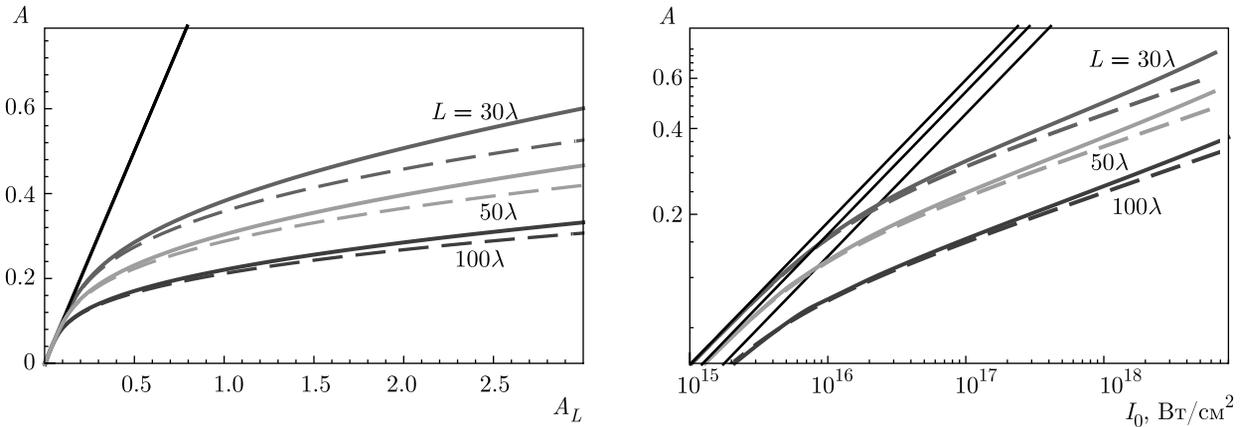


Рис. 5. Сравнение зависимостей нелинейной амплитуды от амплитуды в линейном приближении (слева) и от плотности потока энергии лазерного излучения (справа), полученных с использованием компьютерной алгебры (сплошные линии) и с помощью формулы (34) (пунктирные кривые). Графики построены для электронной температуры плазмы $T = 2$ кэВ, масштабов неоднородности плазмы $L = 30\lambda$ (красные кривые), $L = 50\lambda$ (зеленые кривые), $L = 100\lambda$ (синие кривые) и соответствующих этим параметрам углов падения лазера на плазму $\theta = \theta_{min}$. Черные прямые линии соответствуют линейному пределу

$$A^2 = \frac{2^{1/3} p^{2/3} \left(\sqrt{12p + 81A_L^4} + 9A_L^2 \right)^{2/3} - 24^{1/3} p}{6^{2/3} p^{1/3} \left(\sqrt{12p + 81A_L^4} + 9A_L^2 \right)^{1/3}}. \quad (34)$$

На рис. 5 приведены зависимости $A(A_L)$ и $A(I_0)$, определяемые формулой (34), и численным решением уравнения (23). Из сравнения графиков следует, что аналитическое выражение (34) дает хорошее приближение для амплитуды A при малых значениях $A_L \lesssim 1$. Однако с ростом лазерной интенсивности и при приближении к границе опрокидывания отличие от численных результатов становится все более заметным. Таким образом, формула (34) может быть полезна для быстрой и грубой оценки перенормированной амплитуды и коэффициента поглощения.

5. ОБСУЖДЕНИЕ И ВЫВОДЫ

Развитая выше теория, количественно определяющая амплитуду поля плазменного резонанса, позволяет оценить не только коэффициент нелинейного поглощения/отражения на основной частоте, но и эффективность генерации высших гармоник лазерного излучения, а также квазистационарного электрического поля в окрестности плазменного резонанса. Отметим, что хотя эффект формирования медленно убывающих (степенных) спектров гармоник, благодаря пространственно-временной модуля-

ции релятивистских плазменных колебаний, уже отмечался [5], их строгую количественную характеристику мы оставляем на будущее. Здесь же достигнутый прогресс проиллюстрируем таким примером, как генерация квазистационарного электрического поля в области критической плотности, представляющего собой среднее по времени значение, E_{st} , полного продольного электрического поля плазменного резонанса [36]:

$$E_{st} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} E_{px}(\tau, x) d\tau, \quad (35)$$

где E_{px} определяется неявным образом посредством функций

$$P_0(\chi, l), \quad v_0(\chi, l), \quad x_0(\chi, l), \quad \tau(\chi, l)$$

из (17) через параметрические переменные χ, l (см. [36]).

На рис. 6 показано пространственное распределение квазистатического электрического поля в окрестности точки $x = 0$ при заданных значениях температуры плазмы и масштаба неоднородности для различных значений лазерной плотности потока энергии.

Рисунок 6 показывает, что электрическое поле (35), так же как в теории возмущений [45] и в сильнонелинейной нерелятивистской теории [4], имеет универсальную биполярную форму. При этом нелинейная нерелятивистская теория [4] дает завышен-

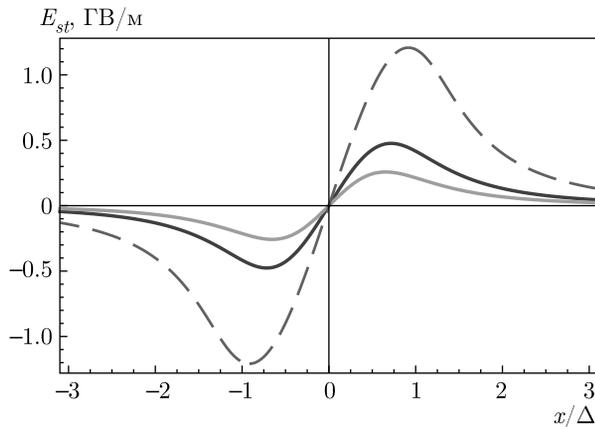


Рис. 6. Пространственное распределение квазистатического электрического поля плазменного резонанса, вычисленное при разных значениях лазерного потока I_0 , для температуры плазмы $T = 2$ кэВ, масштаба неоднородности $L = 30\lambda$ и угла падения $\theta_{min} = 10^\circ$. Синяя и зеленая кривые отвечают интенсивностям лазера соответственно $I_0 = 10^{18}$ Вт/см² и $I_0 \approx 3 \cdot 10^{18}$ Вт/см². Штриховая кривая дает пространственный профиль поля в пренебрежении эффектами релятивистской нелинейности для лазерного потока опрокидывания $I_0 \approx 3 \cdot 10^{17}$ Вт/см² в нерелятивистской теории [4]

ные значения амплитуды поля (см. штриховую линию на рис.6). Так, для заданных значений T, L максимум амплитуды статического поля $E_{st} \approx 1$ ГВ/м в нерелятивистской теории достигается уже при $I_0 \approx 3 \cdot 10^{17}$ Вт/см², а в релятивистской теории при той же лазерной интенсивности имеем $E_{st} \approx 0.3$ ГВ/м.

Графики зависимости максимального значения квазистатического электрического поля от плотности потока энергии лазерного излучения вплоть до порога опрокидывания для разных значений масштаба неоднородности (слева) и температуры плазмы (справа) представлены на рис. 7. На нем видно, что теория предсказывает генерацию квазистатического электрического поля мультимегавольного уровня начиная с лазерной интенсивности $I_0 \approx 10^{16}$ Вт/см² вплоть примерно до 1 ГВ/м в допустимых пределах применимости теории. Увеличение масштаба неоднородности сопровождается увеличением максимально возможной амплитуды статического поля. Однако более резкая зависимость амплитуды E_{st} от интенсивности лазера оказывается в случае плазмы с более резкими градиентами неоднородности плотности плазмы. Увеличение электронной температуры (при заданном масштабе неоднородности) ведет

к понижению амплитуды E_{st} , но (в рамках применимости нашей теории) допускает достижение того же максимально возможного поля, благодаря сдвигу границы опрокидывания плазменной волны в сторону более высокой интенсивности I_0 .

Оценим характерную энергию $W \sim eE_{st}\Delta$, приобретаемую электроном за счет ускорения квазистатическим электрическим полем на расстоянии порядка ширины плазменного резонанса. Так, для параметров $L = 30\lambda$, $T = 2$ кэВ, $I_0 \approx 10^{18}$ Вт/см², $\theta_{min} = 10^\circ$ энергия ускоренных электронов составляет $W \sim 30$ кэВ. При этом отметим, что еще предстоит понять возможные следствия такого механизма генерации быстрых электронов, хотя уже можно сделать вывод о том, что благодаря биполярности электрического поля, быстрые электроны, испытывающие на себе действие разнонаправленной статической электрической силы в плазменном резонансе, не покидают его узкой пространственной области. Последнее позволяет заключить, что такие электроны не окажут дополнительного паразитного эффекта на предподогрев ЛТС-мишени, ограничение которого составляет одну из важнейших задач выявления оптимальных условий реализации ЛТС в схеме прямого нагрева.

В заключение сформулируем основные полученные результаты. Построена аналитическая теория резонансного поглощения лазерного излучения в неоднородной плазме с учетом релятивистской электронной нелинейности в окрестности критической плотности плазмы. Получено уравнение, определяющее нелинейную амплитуду магнитной составляющей электромагнитного поля в точке плазменного резонанса, из решения которого следует значительное понижение величины этой амплитуды в области сильной нелинейности в сравнении с результатами линейной теории поглощения. Продемонстрирован эффект насыщения резонанса — замедления роста амплитуды резонансного поля при увеличении интенсивности накачки и показано, что он проявляется наиболее существенно в случае большой плазменной короны, при масштабах неоднородности плазмы $L \gtrsim 100\lambda$, тогда как при достаточно крутой неоднородности плазмы, $L < 10\lambda$, эффект не столь выражен. Это проиллюстрировано на языке перенормировки амплитуды поля в области критической плотности плазмы, возникающей в представленной теории релятивистского плазменного резонанса. В свою очередь, перенормировка приводит к переопределению границы области применимости (по лазерной интенсивности накачки) релятивистской гидродинамической модели благодаря тому, что опрокидыва-

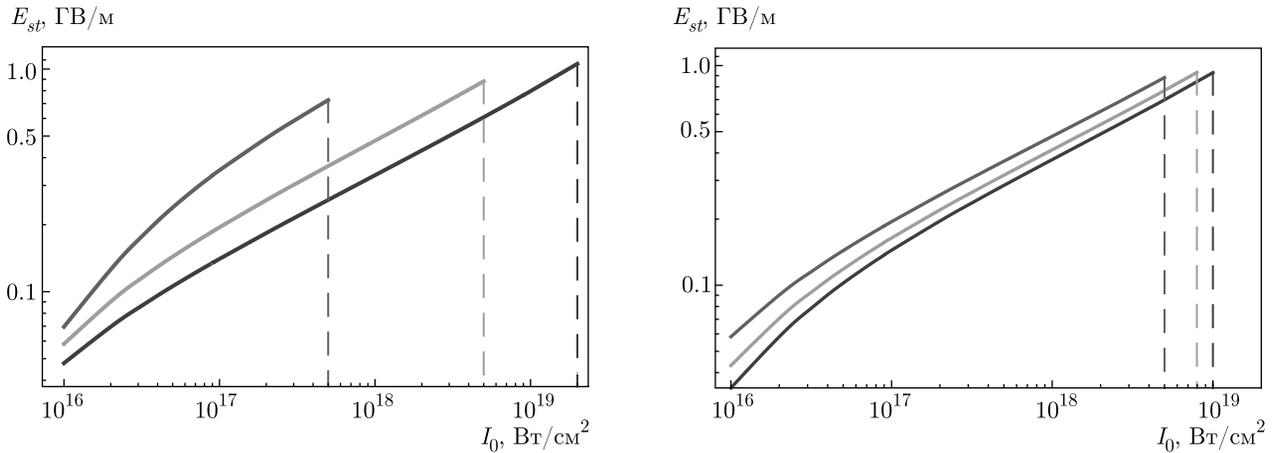


Рис. 7. Зависимости амплитуды квазистатического электрического поля в области плазменного резонанса от плотности потока энергии лазерного излучения. Слева: кривые построены для $T = 2$ кэВ и масштабов неоднородности $L = 50\lambda$ (синяя линия), $L = 30\lambda$ (зеленая линия), $L = 10\lambda$ (красная линия). Справа: кривые построены для $L = 30\lambda$ и электронных температур плазмы $T = 2$ кэВ (красная линия), $T = 3$ кэВ (зеленая линия), $T = 4$ кэВ (синяя линия). Вертикальные штриховые прямые отмечают границы опрокидывания. Углы падения всюду выбраны $\theta = \theta_{min}$ при соответствующих параметрах плазмы

ние плазменной волны возникает при бóльших лазерных интенсивностях.

Найден нелинейный коэффициент резонансного поглощения лазерного излучения, который зависит от четырех лазерно-плазменных управляющих параметров – лазерной интенсивности, масштаба неоднородности плазмы, ее температуры и угла падения лазерного излучения на плазму. Выявлено уменьшение нелинейного коэффициента поглощения с увеличением лазерной плотности потока энергии. Так, например, при угловом параметре $\rho = 1$, масштабе неоднородности $L = 30\lambda$, электронной температуре плазмы $T = 2$ кэВ и интенсивности Nd-лазера $I_0 \approx 5 \cdot 10^{17}$ Вт/см² нелинейный коэффициент поглощения составляет $G \approx 5 \cdot 10^{-2}$, тогда как классическая линейная теория приводила бы к $G_L \approx 0.4$. Выявленное «отключение» резонансного поглощения является следствием релятивистской динамики электронов плазмы в окрестности критической плотности. Релятивистская нелинейность, как эффект увеличения релятивистской эффективной массы электронов, проявляется в виде пространственно-временной модуляции фазы электронных колебаний [36]. Такое проявление релятивистской нелинейности аналогично качественной картине, обсуждавшейся в работах [34, 35], как причине уменьшения поглощения с ростом лазерной интенсивности.

Проведенное аналитическое исследование доказало, что нелинейный характер коэффициента

поглощения и амплитуды поля в резонансе обусловлен именно релятивистской нелинейностью движения электронов плазмы в окрестности критической плотности и не проявляется при учете лишь нерелятивистской нелинейности [4]. Найденное приближенное аналитическое выражение для оценки амплитуды резонансного поля и нелинейного коэффициента поглощения, которое дает хорошее совпадение с результатом их численного расчета при умеренных лазерных плотностях потока энергии $I_0 \approx 10^{16} - 10^{17}$ Вт/см². Исследованы свойства генерируемого квазистатического электрического поля в окрестности критической плотности в условиях нелинейного резонансного поглощения в зависимости от лазерно-плазменных параметров. Развита теория плазменного резонанса открывает возможности дальнейшего продвижения теории генерации высших гармоник [5] по пути строгой количественной характеристики их интенсивности.

Финансирование. Работа выполнена при поддержке Российского научного фонда (грант № 17-12-01283).

ПРИЛОЖЕНИЕ А

Вычисление амплитуды \tilde{C}_1^-

В условиях слабой неоднородности плазмы $k_0 L \gg 1$ приближенное решение уравнения (11) можно записать через функции Эйри:

$$\alpha_1^- = \frac{i}{2} \alpha_1^+ \exp \left[\frac{2\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(0) \right] - \frac{i}{2} \left(\frac{2cL}{\omega_0} \right)^{1/2} \times \exp \left[\frac{\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(0) \right] \int_{-\infty}^{\infty} d\xi f_1(\xi) K_1 [(\xi - i\Delta)k_y]. \quad (41)$$

В области, где плотность плазмы обращается в нуль, т. е. при $x \rightarrow -\infty$, магнитное поле представляется в виде линейной комбинации падающей и отраженной плоских волн с коэффициентами \tilde{C}_1^+ и \tilde{C}_1^- (12). Эти коэффициенты могут быть выражены через α_1^+ и α_1^- , если использовать в (40) формулы (38) и перейти к пределу $x \rightarrow -\infty$ с учетом асимптотических выражений для функций Эйри. В результате имеем

$$\begin{aligned} \tilde{C}_1^+ &= (i\alpha_1^+ + \alpha_1^-) \frac{\exp[-i\mathcal{Z}]}{2\sqrt{\pi}|\cos\theta|}, \\ \tilde{C}_1^- &= (\alpha_1^- - i\alpha_1^+) \frac{\exp[i\mathcal{Z}]}{2\sqrt{\pi}|\cos\theta|}, \\ \mathcal{Z} &= \frac{\pi}{4} + \frac{\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(-\infty). \end{aligned} \quad (42)$$

Исключая из (42) коэффициенты α_1^+ и α_1^- с учетом (41) и принимая во внимание, что $K_1(x) \approx 1/x$ в интересующей нас области локализации источника $(\xi - i\Delta)k_y \ll 1$, получим связь коэффициентов \tilde{C}_1^- и \tilde{C}_1^+ :

$$\begin{aligned} \tilde{C}_1^- &= -i \exp \left[2i \frac{\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(-\infty) \right] \times \\ &\times \frac{1 - \frac{1}{2} \exp \left[\frac{2\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(0) \right]}{1 + \frac{1}{2} \exp \left[\frac{2\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(0) \right]} \tilde{C}_1^+ - \\ &- \frac{i \exp [\mathcal{L}_+(0) + i\mathcal{Z}]}{1 + \frac{1}{2} \exp \left[\frac{2\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(0) \right]} \left(\frac{cL}{2\pi\omega_0 |\cos\theta| k_y^2} \right)^2 \times \\ &\times \int_{-\infty}^{\infty} d\xi \frac{f_1(\xi)}{\xi - i\Delta}. \end{aligned} \quad (43)$$

Кроме того, в случае линейного профиля плотности плазмы, когда координатная зависимость диэлектрической проницаемости на основной частоте имеет вид

$$\varepsilon_1 = (i\Delta - x)/L,$$

справедлива формула

$$\mathcal{L}_+(0) = -(2L/3) \sin^3 \theta.$$

Принимая во внимание, что функции полей $P(x, t)$, $Q(x, t)$ и скоростей $v(x, t)$, $u(x, t)$ обращаются в нуль при $x \rightarrow \infty$, упростим интеграл от источника $f_1(x)$ в (43) интегрированием по частям, и, как следствие, исключением из подынтегрального выражения функций поперечных компонент электрического поля u и скорости электронов Q :

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} dx \frac{f_1(x)}{x - i\Delta} &= \frac{a}{c} i k_y \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx}{x - i\Delta} \times \\ &\times \left[v P_x - i\omega_0 v(\gamma v)_x - \frac{\omega_0^2}{a} (\gamma - 1)v \right]_1 = \\ &= \frac{a i k_y}{2\pi c} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx}{x - i\Delta} \int_0^{2\pi} d(\omega_0 t - y k_y) \times \\ &\times \left[v P_x - i\omega_0 v(\gamma v)_x - \frac{\omega_0^2}{a} (\gamma - 1)v \right] e^{\omega_0 t - y k_y} = \frac{a i k_y}{2\pi c} \times \\ &\times \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dx}{x - i\Delta} \int_0^{2\pi} d\tau \left[v P_x - i\omega_0 v(\gamma v)_x - \frac{\omega_0^2}{a} (\gamma - 1)v \right] e^\tau = \\ &= \frac{i\Delta\omega_0^3 k_y}{2\pi c a} \exp[-i\pi + i \arg B_1(0)] \mathcal{I}, \end{aligned} \quad (44)$$

где

$$\begin{aligned} \mathcal{I} &= \int_{-\infty}^{\infty} dl \int_0^{2\pi} d\chi \frac{v_1 e^{i\tau(\chi, l)}}{x_0 - i} \times \\ &\times [\partial_\chi \tau \partial_l (P_0 - i\gamma v_1) - \partial_l \tau \partial_\chi (P_0 - i\gamma v_1) - \\ &- (\partial_\chi \tau \partial_l x_0 - \partial_l \tau \partial_\chi x_0) (\gamma - 1)], \\ P_0 &= -\frac{A}{1 + l^2} (l \cos \chi + \sin \chi), \\ v_0 &= -\frac{A}{1 + l^2} (l \sin \chi - \cos \chi), \quad \gamma = 1 + \frac{B^2 v_0^2}{2}, \\ x_0 &= l - P_0, \quad v_1 = v_0 \frac{\left(1 + \frac{1}{4} B^2 v_0^2\right)^{1/2}}{1 + \frac{1}{2} B^2 v_0^2}, \\ \tau(\chi, l) &= \chi - \left(\zeta E(\varphi; k) - \frac{2}{\zeta} F(\varphi; k) - \varphi \right), \\ \zeta &= \sqrt{4 + B^2 (v_0^2 + P_0^2)}, \quad \varphi = \arcsin \frac{P_0}{\sqrt{v_0^2 + P_0^2}}, \\ k &= \sqrt{\frac{B^2 (v_0^2 + P_0^2)}{4 + B^2 (v_0^2 + P_0^2)}}. \end{aligned} \quad (45)$$

Здесь из соображений удобства мы ввели безразмерные функции и переменные P_0, v_1, x_0 , которые связаны с P, v, x следующим образом:

$$P_0 = \frac{a}{\Delta\omega_0^2} P, \quad v_1 = \frac{a}{\Delta\omega_0} v$$

и $x_0 = x/\Delta$ (см. [36]). Кроме того, в (44) совершен переход от переменных интегрирования (τ, x) к переменным (χ, l) с якобианом перехода

$$D \equiv \partial_\chi \tau \partial_l x_0 - \partial_l \tau \partial_\chi x_0.$$

Совокупность формул

$$P_0(\chi, l), \quad v_0(\chi, l), \quad x_0(\chi, l), \quad \tau(\chi, l)$$

через параметрические переменные χ, l неявным образом определяет нелинейную зависимость электрического поля плазменного резонанса. Нелинейная зависимость электрического поля и скорости от координаты и времени в формулах (11) определяется неявным образом через параметрическую переменную, а в выражениях (13) для конечных преобразований скорости и времени в роли параметрических переменных выступают уже электрическое поле и скорость.

ПРИЛОЖЕНИЕ В

Вычисление $R_1(0)$

Исходя из (40), запишем формулу для первой гармоники магнитного поля в точке $x = 0$:

$$R_1(0) = \alpha_1^+ \Psi_1^+(0) + \alpha_1^- \Psi_1^-(0) + \frac{\pi c L}{\omega_0} \times \int_{-\infty}^0 d\xi \frac{f_1(\xi)}{i\Delta - \xi} [\Psi_1^+(0) \Psi_1^-(\xi) - \Psi_1^+(\xi) \Psi_1^-(0)]. \quad (46)$$

Подставляя в (46) выражение (41), связывающее α_1^- с α_1^+ , получим

$$R_1(0) = \alpha_1^+ \left(\Psi_1^+(0) + \frac{i}{2} \exp \left[\frac{2\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(0) \right] \Psi_1^-(0) \right) - \frac{i}{2} \left(\frac{2cL}{\omega_0} \right)^{1/2} \Psi_1^-(0) \exp \left[\frac{\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(0) \right] \times \int_{-\infty}^{\infty} d\xi f_1(\xi) K_1 [(\xi - i\Delta)k_y] + \frac{\pi c L}{\omega_0} \times \int_{-\infty}^0 d\xi \frac{f_1(\xi)}{i\Delta - \xi} [\Psi_1^+(0) \Psi_1^-(\xi) - \Psi_1^+(\xi) \Psi_1^-(0)] = \Lambda_1 + \Lambda_2 + \Lambda_3. \quad (47)$$

Сравним два интегральных вклада Λ_2 и Λ_3 в (47). Чтобы оценить интегралы, воспользуемся (38) и приближенными формулами для модифицированных функций Бесселя первого порядка при малых

значениях аргумента $K_1(x)|_{x \simeq 0} \simeq 1/x$, $I_1(x)|_{x \simeq 0} \simeq x/2$:

$$\Psi_1^+(0) \Psi_1^-(\xi) - \Psi_1^+(\xi) \Psi_1^-(0) \simeq \frac{\omega_0 \xi (2i\Delta - \xi)}{2\pi L c}, \quad (48)$$

$$\Lambda_2 \simeq \frac{i}{2\pi(\xi - i\Delta)k_y^2}, \quad \Lambda_3 \simeq \frac{\xi(2i\Delta - \xi)}{2(i\Delta - \xi)}.$$

Из второго условия применимости нашей модели (7) следует, что $\Lambda_2 \gg \Lambda_3$, а значит, вкладом Λ_3 можно пренебречь по параметру малости $k_y^2 \Delta^2 \ll 1$. Таким образом, мы получили упрощенное уравнение для амплитуды магнитного поля в точке плазменного резонанса:

$$R_1(0) = \Lambda_1 + \Lambda_2 = \alpha_1^+ \Psi_1^+(0) + \alpha_1^- \Psi_1^-(0). \quad (49)$$

Отсюда, используя связь α_1^+ с α_1^- из (41), а также формулы (42), найдем

$$R_1(0) = \left(\frac{2c|\cos\theta|}{\pi\omega_0 L \sin^2\theta} \right)^{1/2} \times \frac{\exp[\mathcal{L}_+(0) + iZ]}{1 + \frac{1}{2} \exp \left[\frac{2\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(0) \right]} \tilde{C}_1^+ \times \frac{(i/\pi k_y^2)}{1 + \frac{1}{2} \exp \left[\frac{2\omega_0}{c} \mathcal{L}_+(0) \right]} \int_{-\infty}^{\infty} d\xi \frac{f_1(\xi)}{\xi - i\Delta}. \quad (50)$$

ПРИЛОЖЕНИЕ С

Аналитическая оценка интеграла \mathcal{I}

Найдем приближенно интеграл (17) для значений амплитуды A , при которых можно считать, что $A^2 \ll 1$. В работе [36] было показано, что в релятивистском режиме параметр B , отвечающий за релятивистскую нелинейность, при температурах $T \simeq \simeq 1$ кэВ принимает значения $B \simeq 1$, а безразмерная амплитуда при этом $A \simeq 0.5$, что указывает на законность разложения подынтегральных функций в (17) в ряд по параметру $(AB)^2$. Отличим τ от χ при этом можно пренебречь. Итак,

$$\mathcal{I} \approx \int_{-\infty}^{\infty} dl \int_0^{2\pi} d\chi \frac{v_1 e^{i\chi}}{x_0 - i} \times [\partial_l (P_0 - i\gamma v_0) - \partial_l x_0 (\gamma - 1)]. \quad (51)$$

Выражая скорость v_1 через v_0 , а x_0 через P_0 и разлагая функцию v_1 в ряд по параметру $(AB)^2$ с точностью до первого порядка малости, получим

$$\mathcal{I} \approx \int_{-\infty}^{\infty} dl \int_0^{2\pi} d\chi \frac{v_0 e^{i\chi}}{x_0 - i} \times \left[\partial_l (P_0 - iv_0) - \frac{B^2 v_0^2}{2} \left(1 - \frac{1}{4} \partial_l P_0 \right) \right] = \mathcal{I}_0 + \mathcal{I}_1 + \mathcal{I}_2. \quad (52)$$

Рассмотрим первое слагаемое

$$\mathcal{I}_0 = \int_{-\infty}^{\infty} dl \int_0^{2\pi} d\chi \frac{v_0 e^{i\chi}}{x_0 - i} \partial_l (P_0 - iv_0), \quad (53)$$

которое не зависит от B и соответствует учету нерелятивистской нелинейности, т. е. $\mathcal{I}_0 = \mathcal{I}_{|c=\infty}$. Замечая, что подынтегральная функция имеет особенность $(x_0 - i)^{-1}$, вычислим \mathcal{I}_0 по теории вычетов, заменив интегрирование по χ интегрированием по окружности единичного радиуса. Переход к переменной $z = e^{i\chi}$ дает

$$v_0 = \frac{A(1 - \alpha z^2)}{2z(1 + il)}, \quad P_0 = -\frac{A(1 + \alpha z^2)}{2z(l - i)}, \quad (54)$$

$$x_0 - i = \frac{A(z - z_1)(z - z_2)}{2z(l + i)},$$

где

$$z_{1,2} = -\frac{1 + l^2}{A} \left(1 \pm \sqrt{1 - \frac{A^2}{\alpha(1 + l^2)^2}} \right), \quad (55)$$

$$\alpha = \frac{1}{z_1 z_2} = \frac{l - i}{l + i}, \quad |z_1| > 1, \quad |z_2| < 1.$$

Тогда интеграл по времени χ сводится к интегралу по кругу $|z| = 1$, который определяется вычетами в точках $z = z_2, z = 0$ и равен нулю:

$$\int_{|z|=1} dz \frac{1 - \alpha z^2}{z(z - z_1)(z - z_2)} = 2\pi i \sum_{z=z_2,0} \text{res} \frac{1 - \alpha z^2}{z(z - z_1)(z - z_2)} = 0. \quad (56)$$

Таким образом, нерелятивистское слагаемое \mathcal{I}_0 не дает вклада в \mathcal{I} . Слагаемое \mathcal{I}_1 после замены $z = e^{i\chi}$ преобразуется следующим образом:

$$\mathcal{I}_1 = -\frac{B^2}{2} \int_{-\infty}^{\infty} dl \int_0^{2\pi} d\chi \frac{v_0^3 e^{i\chi}}{x_0 - i} = -\frac{B^2 A^2}{8i} \times \int_{-\infty}^{\infty} dl \frac{l+i}{(1+il)^3} \int_{|z|=1} dz \frac{1-3\alpha z^2+3\alpha^2 z^4-\alpha^3 z^6}{z^2(z-z_1)(z-z_2)}. \quad (57)$$

Интеграл по кругу определяется суммой вычетов подынтегральной функции $f(z)$ в точках $z = z_2, z = 0$:

$$\int_{|z|=1} dz f(z) = 2\pi i \sum_{z=z_2,0} \text{res} \frac{1-3\alpha z^2+3\alpha^2 z^4-\alpha^3 z^6}{z^2(z-z_1)(z-z_2)} = 2\pi i \frac{3z_1 - z_2}{z_1^3 z_2} \approx \frac{6i\pi}{z_1^2 z_2}. \quad (58)$$

Последнее приближенное равенство справедливо, поскольку $|z_1| \gg |z_2|$. Переходя в (55) для $z_{1,2}$ к пределу при $A^2 \ll 1$ и вычисляя интеграл по пространству вновь по теории вычетов, получим

$$z_2 \approx -\frac{A}{2\alpha(1 + l^2)},$$

$$\mathcal{I}_1 \approx \frac{3i\pi A^3 B^2}{8} \int_{-\infty}^{\infty} dl \frac{l^2 + 2il - 1}{(1 + l^2)^3} = -\frac{3i\pi^2}{32} A^3 B^2. \quad (59)$$

Вклад \mathcal{I}_2 находится аналогичным образом и равен

$$\mathcal{I}_2 = \frac{B^2}{8} \int_{-\infty}^{\infty} dl \int_0^{2\pi} d\chi \frac{e^{i\chi} v_0^3 \partial_l P_0}{x_0 - i} \approx -\frac{15i\pi^2 B^2 A^5}{4096}. \quad (60)$$

Принимая во внимание, что $\mathcal{I}_2 \ll \mathcal{I}_1$, запишем окончательное приближенное значение интеграла \mathcal{I} :

$$\mathcal{I} \approx -\frac{3i\pi^2}{32} A^3 B^2. \quad (61)$$

ЛИТЕРАТУРА

1. M. J. Rosenberg, A. A. Solodov, J. F. Myatt, W. Seika, P. Michel, M. Hohenberger, R. W. Short, R. Epstein, S. P. Regan, E. M. Campbell, T. Chapman, C. Goyon, J. E. Ralph, M. A. Barrios, J. D. Moody, and J. W. Bates, Phys. Rev. Lett. **120**, 055001 (2018).
2. N. S. Erokhin, S. S. Moiseev, and V. V. Mukhin, Nuclear Fusion **14**, 3 (1974).
3. A. B. Vladimirkii and V. P. Silin, Sov. J. Plasma Phys. **6**, 196 (1980).
4. V. F. Kovalev and V. V. Pustovalov, Teor. Mat. Fiz. **81**, 69 (1989).

5. I. I. Metelskii, V. F. Kovalev, and V. Y. Bychenkov, *Phys. Plasm.* **26**, 113113 (2019).
6. J. Albritton and P. Koch, *Phys. Fluids* **18**, 1136 (1975).
7. С. В. Буланов, Л. М. Коврижных, А. С. Сахаров, *ЖЭТФ* **72**, 1869 (1977).
8. A. Y. Lee, Y. Nishida, N. C. Lundmann et al., *Phys. Rev. Lett.* **48**, 319 (1982).
9. В. Л. Гинзбург, *Распространение электромагнитных волн в плазме*, Наука, Москва (1967).
10. U. Teubner and P. Gibbon, *Rev. Mod. Phys.* **81**, 445 (2009).
11. K. Forsterling, *Arch. elect. Ubertr.* **3**, 115; **5**, 209 (1949).
12. K. Forsterling and H. O. Wuster, *J. Atmos. Terr. Phys.* **2**, 22 (1951).
13. N. G. Denisov, *Sov. Phys. Sov. Phys. JETP* **4**, 544 (1956).
14. B. N. Gershman, V. L. Ginzburg, and N. G. Denisov, *Usp. Fiz. Nauk* **61**, 561 (1957).
15. P. Hirsch and J. Shmoys, *Radio Sci. Res. NAtH. Bur. Stand.* **64D**, 521 (1956).
16. P. Hirsch, *Radio Sci.* **2**, 407 (1967).
17. A. D. Piliya, *Sov. Phys. Tech. Phys.* **11**, 609 (1966).
18. А. Я. Омельченко, К. Н. Степанов, *УФЖ* **12**, 1445 (1967).
19. T. Tang, *Radio Sci.* **5**, 111 (1970).
20. А. Я. Омельченко, В. И. Панченко, К. Н. Степанов, *Известия ВУЗов, Радиофизика* **14**, 10 (1971).
21. D. L. Kelly and Jr. A. Banos, *UCLA Plasma Physics Group Report NO. PPG-170* (1974).
22. D. W. Forslund, J. M. Kindel, K. Lee, E. L. Lindman, and R. L. Morse, *Phys. Rev. A* **11**, 679 (1975).
23. K. G. Budden, *Radio Waves in the Ionosphere*, Cambridge University, Cambridge, England (1961).
24. Th. Speziale and P. J. Catto, *Phys. Fluids* **20**, №6 (1977).
25. G. J. Pert, *Plasma Phys.* **20**, 175 (1978).
26. D. E. Hinkel-Lipsker, B. D. Fried, and G. J. Morales, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2680 (1989).
27. E. Ahedo and J. R. Sanmartin, *Plasma Phys. Controll. Fusion* **29**, 419 (1987).
28. D. E. Hinkel-Lipsker, B. D. Fried, and G. J. Morales, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 1862 (1991).
29. D. E. Hinkel-Lipsker, B. D. Fried, and G. J. Morales, *Phys. Fluids B* **4**, 1772 (1992).
30. D. E. Hinkel-Lipsker, B. D. Fried, and G. J. Morales, *Phys. Fluids B* **5**, 1746 (1993).
31. K. G. Estabrook, E. J. Valeo, and W. L. Kruer, *Phys. Fluids* **18**, 1151 (1975).
32. S. C. Wilks, *Phys. Fluids B* **5**, 2603 (1993).
33. S. V. Bulanov, N. M. Naumova, and F. Pegoraro, *Phys. Plasmas* **1**, 745 (1994).
34. Wen-Jun Ding, Z.-M. Sheng, J. Zhang, and M. Y. Yu, *Phys. Plasmas* **16**, 042315 (2009).
35. S. K. Rajouria, K. K. Magesh Kumar, and V. K. Tripathi, *Phys. Plasmas* **20**, 083112 (2013).
36. I. I. Metelskii, V. F. Kovalev, and V. Y. Bychenkov, *Plasma Phys. Rep.* **43**, 175 (2017).
37. Hui Xu, Zheng-Ming Sheng, Jie Zhang, and M. Y. Yu, *Phys. Plasmas* **13**, 123301 (2006).
38. В. Б. Гильденбург, *ЖЭТФ* **46**, 2156 (1964).
39. В. Б. Гильденбург, И. Г. Кондратьев, Г. А. Марков, *Изв. вузов. Радиофизика* **12**, 655 (1969).
40. В. Б. Гильденбург, Г. М. Фрайман, *ЖЭТФ* **69**, 1601 (1975).
41. А. М. Журавский, *Справочник по эллиптическим функциям*, Изд-во АН СССР, Москва (1941).
42. А. П. Прудников, Ю. А. Брычков, О. И. Маричев, *Интегралы и ряды*, Наука, Москва (1981).
43. <https://www.wolfram.com/mathematica/>.
44. J. M. Dawson, *Phys. Rev.* **113**, 383 (1959).
45. А. Г. Абдуллаев, Ю. М. Алиев, В. Ю. Быченков, А. А. Фролов, *Препринт ФИАН № 8* (1986).

К СВЕДЕНИЮ АВТОРОВ

Редакция ЖЭТФ просит авторов при направлении статей в печать руководствоваться приведенными ниже правилами.

1. В ЖЭТФ публикуются статьи, содержащие изложение оригинальных научных результатов, не опубликованных и не предназначенных к публикации в другом месте. В отдельных случаях по заказу редколлегии публикуются актуальные статьи обзорного характера.

2. Статьи должны быть изложены с предельной краткостью, совместимой с ясностью изложения, и окончательно обработаны. Следует избегать повторения данных таблиц или графиков в тексте статьи, а также представления численных результатов в виде таблиц и графиков одновременно. Не следует злоупотреблять введением новых аббревиатур в дополнение к общепринятым, таким как ЯМР, УФ и т. д.

3. К статье необходимо прилагать короткую аннотацию, в которой должны быть четко сформулированы цель и результаты работ (аннотация и раздел «Выводы» не должны дублировать друг друга).

4. Редакция принимает статьи:

а) по электронной почте по адресу JETP@kapitza.ras.ru;

б) в «on-line» режиме на веб-странице журнала (www.jetp.ac.ru);

в) по почте или непосредственно в редакции (статья должна быть представлена в двух экземплярах, электронный вариант также необходим).

В электронном варианте текст должен быть представлен в формате \LaTeX или Word, рисунки — в формате PostScript (*.ps) или EncapsulatedPostScript (*.eps), каждый рисунок отдельным файлом (желательно также представить рисунки в том формате, в котором они готовились). В том случае, если статья посылается по электронной почте, текст должен быть представлен дополнительно в формате ps или pdf.

5. Статьи должны быть напечатаны шрифтом 12 пунктов в одну колонку через полтора интервала, на одной стороне листа, с полями с левой стороны

листа не уже 4 см; рукописные вставки не допускаются. В обозначениях и индексах (в тексте и на рисунках) не должно быть русских букв. Например, следует писать P_{opt} , а не $P_{\text{опт}}$. Все сколько-нибудь громоздкие формулы должны выноситься на отдельные строки. Векторные величины должны быть выделены прямым полужирным шрифтом.

Все страницы рукописи должны быть пронумерованы. Таблицы, аннотация, литература, подписи к рисункам должны быть напечатаны на отдельных страницах.

6. Подстрочные примечания должны иметь сплошную нумерацию по всей статье. Цитируемая литература должна даваться не в виде подстрочных примечаний, а общим списком в конце статьи с указанием в тексте статьи ссылки порядковой цифрой в прямых скобках (например, [1]). Литература дается в порядке упоминания в статье. Указываются инициалы и фамилии авторов (всех авторов, если число авторов меньше четырех, и троих и др., если число авторов больше четырех). Порядок оформления литературы виден из следующих примеров:

1. В. Б. Берестецкий, Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Квантовая электродинамика*, Наука, Москва (1984), с. 1.
2. А. М. Сергеев, Р. И. Чернова, А. Я. Сергиенко, *ФТТ* **30**, 835 (1988).
3. R. Brewer, J. M. Faber, C. N. Malleson et al., *Phys. Rev. A* **18**, 1632 (1978).
4. A. N. Stirling and D. Watson, in *Progress in Low Temperature Physics*, ed. by D. F. Brewer, North Holland, Amsterdam (1986), Vol. 10, p. 683.
5. К. Д. Громов, М. Э. Ландсберг, в сб. *Тез. докл. X Всесоюзн. конф. по физике низких температур* (Ташкент, 1986), Наука, Москва (1987), с. 434.
6. M. P. Elliot, V. Rumford, and A. A. Smith, Preprint TH 4302-CERN (1988).

7. Л. Н. Шалимова, А. С. Крюков, Препринт ОИЯИ № Р-16-22 (1987).
 8. Н. В. Васильев, Дисс. ... канд. физ.-матем. наук, МГУ, Москва (1985).
 9. A. Fang and C. Howald, E-print archives, cond-mat/0404452.
7. Все рисунки и чертежи должны быть выполнены четко, в формате, обеспечивающем ясность понимания всех деталей; это особенно относится к фотокопиям. Надписи на рисунках следует по возможности заменять цифрами и буквенными обозначениями, разъясняемыми в подписи к рисунку или в тексте. В рукописи рисунки должны быть представлены на отдельных страницах в конце статьи.
8. Редакция посылает автору одну корректуру по электронной почте в виде *.ps-файла. Постраничный список исправлений должен быть отправлен автором на электронный адрес журнала в течение недели.
 9. К рукописи необходимо приложить электронный адрес (e-mail), почтовый адрес места работы с индексом, фамилию, полное имя и отчество автора, с которым предпочтительно вести переписку, а также номер телефона, служебного или домашнего.

Главный редактор *А. Ф. АНДРЕЕВ*

Редколлегия:

д-р физ.-мат. наук *И. Г. ЗУБАРЕВ*,
д-р физ.-мат. наук *Е. И. КАЦ* (зам. гл. редактора, представительство ЖЭТФ во Франции),
д-р физ.-мат. наук *В. П. КРАЙНОВ*, акад. *М. В. САДОВСКИЙ*, канд. физ.-мат. наук *С. С. СОСИН*,
канд. физ.-мат. наук *Ю. С. БАРАШ*, член-корр. РАН *С. В. ТРОИЦКИЙ* (зам. гл. редактора),
член-корр. РАН *И. А. ФОМИН* (зам. гл. редактора),
д-р физ.-мат. наук *Д. Е. ХМЕЛЬНИЦКИЙ* (зам. гл. редактора, представительство ЖЭТФ
в Великобритании), акад. *А. М. ЧЕРЕПАЩУК*

Редакционный совет:

д-р физ.-мат. наук *В. Т. ДОЛГОПОЛОВ*, член-корр. РАН *В. В. ЛЕБЕДЕВ*,
д-р физ.-мат. наук *В. С. ПОПОВ*

Зав. редакцией *Н. Г. Церевитинова*
Редакторы: *Л. Б. Кульчицкая*, *Т. Г. Орехова*, *Т. Н. Смирнова*