

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 112

Выпуск 9

10 ноября 2020

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

Заместители главного редактора

Г. Е. Воловик, В. П. Пастухов

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

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

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

© Российская академия наук, 2020

© Редколлегия журнала “Письма в ЖЭТФ” (составитель), 2020

Тонкая структура спектра фотолюминесценции в алмазе при многократной эмиссии оптического фонона в ходе автолокализации фотовозбужденных электронов

С. И. Кудряшов⁺¹⁾, А. О. Левченко⁺, П. А. Данилов⁺, Н. А. Смирнов⁺, А. Е. Рупасов⁺,
Р. А. Хмельницкий⁺, О. Е. Ковальчук*, А. А. Ионин⁺

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

*Научно-исследовательское геологическое предприятие, АК “АЛРОСА”, 678174 Мирный, Россия

Поступила в редакцию 15 сентября 2020 г.

После переработки 28 сентября 2020 г.

Принята к публикации 29 сентября 2020 г.

Автолокализация электронов, фотовозбужденных в виде электрон-дырочной плазмы (ЭДП, плотность $\sim 10^{21}$ см⁻³) в природном алмазе при комнатной температуре лазерными импульсами видимого диапазона с длиной волны 525 нм и длительностью 150 фс, протекает нестационарно путем ступенчатой многоактной ($N \leq 9$ актов) эмиссии оптического фонона на субпикосекундных временах. Это проявляется для зондирующего сигнала фотолюминесценции в ее тонкой периодической структуре в запрещенной зоне, начинающейся от края межзонного поглощения, причем интенсивность многофононных пиков фотолюминесценции проходит через максимум при $N = 4-6$ актов, где энергия электронно-размягченного оптического фонона восстанавливается, а уширение пиков монотонно растет. Связывая уширение пиков с кинетикой испускания очередного фонона, их ширины могут быть сопоставлены с временной шкалой динамики электрон-дырочной плазмы и многофононной эмиссии в ходе автолокализации. Тогда начальный рост интенсивности пиков демонстрирует автостимулированную эмиссию фононов в ходе автолокализации, а насыщение и последующий спад – субпикосекундную оже-рекомбинацию плазмы, существенно подавляющую фотолюминесценцию из-за резкого уменьшения концентрации дырок (до 10^{19} см⁻³), но не сам процесс автолокализации.

DOI: 10.31857/S1234567820210016

1. Автолокализация индивидуальных неравно-весных носителей (электронов, дырок, экситонов) в диэлектрических кристаллах протекает внутри зонной щели путем структурной деформации кристаллографической ячейки, понижающей энергию квази-частиц за счет увеличения эластической энергии решетки [1]. Структурное превращение происходит путем многофононной эмиссии с возбуждением неполярной колебательной моды, активной в спектрах комбинационного рассеяния (КР) и наиболее сильно взаимодействующей с носителями в рамках оптического или акустического потенциала деформации (зачастую – так называемой “мягкой” моды данной фазы кристалла). Тем не менее, вследствие индивидуальности акта автолокализации его результатом является не структурно-фазовое превращение кристалла, а формирование точечного дефекта – вакансии, междоузлия или их френкелевской пары [2].

В частности, в алмазе под действием ионизирующего или нейтронного излучения формируются целые серии разнообразных оптически-активных точечных дефектов, которые, как правило, в спектрах поглощения или фотолюминесценции имеют многофононную структуру [3–5]. Аналогичные процессы происходят при воздействии на прозрачные диэлектрики ультракоротких лазерных импульсов, которые вызывают не только когерентные нелинейные процессы (например, стоксово и анти-стоксово КР-рассеяние [6]), но и нестационарную фотолюминесценцию, иллюстрирующую природу и динамику электрон-фононного взаимодействия и образования точечных дефектов в данном кристалле. В то время как для ряда других диэлектрических сред – плавленого кварца, силикатного стекла – детальный анализ тонкой структуры нестационарной фотолюминесценции позволил установить природу возбуждаемой колебательной моды и тип возникающего дефекта [7, 8], для алмаза параметры и механизм процесса автолокализации носителей исследованы недоста-

¹⁾e-mail: kudryashovsi@lebedev.ru

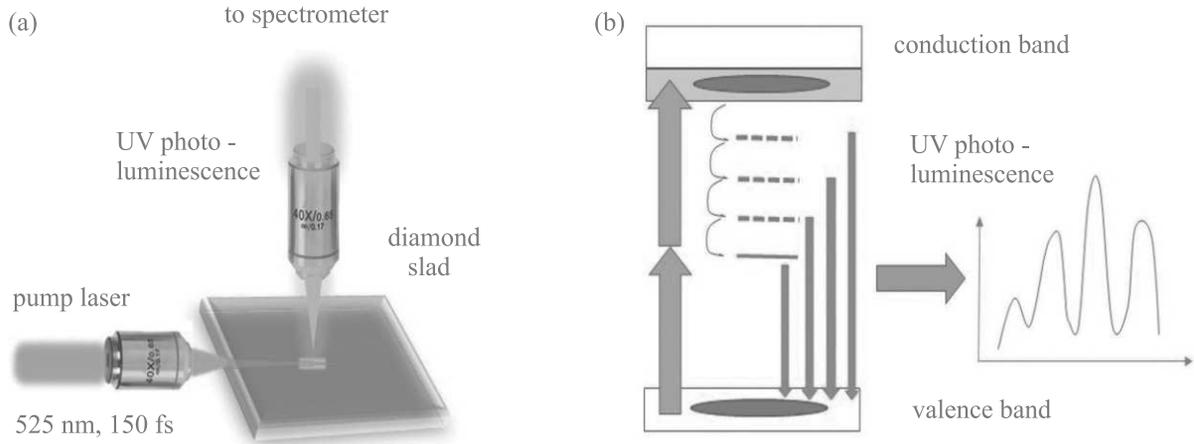


Рис. 1. (Цветной онлайн) (а) – Схема эксперимента (синий прямоугольник в кристалле – область фотовозбуждения/люминесценции) и (б) – диаграмма процессов, связанных с прямым двухфотонным фотовозбуждением электрон-дырочной плазмы в области “хвостов” основных зон, многофононной автолокализацией носителей и сопутствующей фотолюминесценцией в алмазе

точно [9]. Важность понимания микроскопической природы данного процесса связана с использованием ультракоротких лазерных импульсов для формирования квантовых однофотонных и сенсорных элементов на базе точечных дефектов его структуры – NV-центров и других оптически-активных комплексов [10].

В настоящей работе при комнатной температуре экспериментально исследована тонкая периодическая структура спектра нестационарной фотолюминесценции внутри зонной щели алмаза, фотовозбужденного ультракоротким лазерным импульсом выше края межзонного поглощения. Показано, что данная структура связана с автолокализацией носителей в алмазе и характеризует динамику этого процесса.

2. Возбуждение фотолюминесценции в алмазе проводилось последовательностью фокусированных в его объеме (микро-объектив Nikon, $NA = 0.3$) через боковую грань (рис. 1а) импульсов второй гармоники лазера ТЕМА со следующими параметрами: длина волны – 525 нм, длительность на полувывсоте – 150 фс, энергия – 40 нДж, частота следования – 80 МГц. Сигнал фотолюминесценции собирался в поперечной геометрии через верхнюю грань алмаза кварц-флюоритовым микро-объективом (ЛОМО, $NA = 0.2$) и регистрировался в диапазоне 190–670 нм спектрометром ASP150F с открытой входной щелью. В качестве образца в работе использовалась пластина неокрашенного природного алмаза типа IaB со следующими размерами (длина/ширина – 3 мм, высота – 2 мм) и высоким общим содержанием азота $\approx 7 \times 10^2$ ppm, а также оптическими окнами на всех

шести гранях и полосой прозрачности выше 300 нм (рис. 2).

3. Наши предшествующие исследования показали двухфотонное возбуждение фотолюминесценции в данном образце алмаза под действием множественных ультракоротких лазерных импульсов с той же длиной волны 525 нм (энергия фотона 2.4 эВ, волновое число – около 19000 см^{-1}) (рис. 1б) (см. также работы [3, 5]). В результате такого фотовозбуждения электрон-дырочных пар чуть выше края межзонного поглощения, на фоне слабой непрерывной эмиссии излучения при релаксации дырок и электронов в соответствующих валентной зоне и зоне проводимости, наблюдается также интенсивная и модулированная по спектру фотолюминесценция непосредственно в запрещенной зоне. Известно, что соответствующие состояния носителей являются локализованными и антисвязывающими квазиатомными. Периодическая структура спектра фотолюминесценции в диапазоне $15000\text{--}30000 \text{ см}^{-1}$ (330–660 нм) с периодом $\approx 1100\text{--}1300 \text{ см}^{-1}$ (рис. 2) характеризует локализацию носителей с понижением их энергии в запрещенной зоне через многофононную эмиссию оптических фононов (волновое число в невозбужденном состоянии алмаза – 1331 см^{-1} [11], энергия – 0.16 эВ), что в случае алмаза наблюдается впервые.

Спектр фотолюминесценции, отвечающий процессу автолокализации носителей, доходит практически до положения бесфононного пика NV^0 -центра (575 нм) [12], образование которого из предшествующей высоколабильной вакансии с участием атома азота как примеси замещения можно предположить

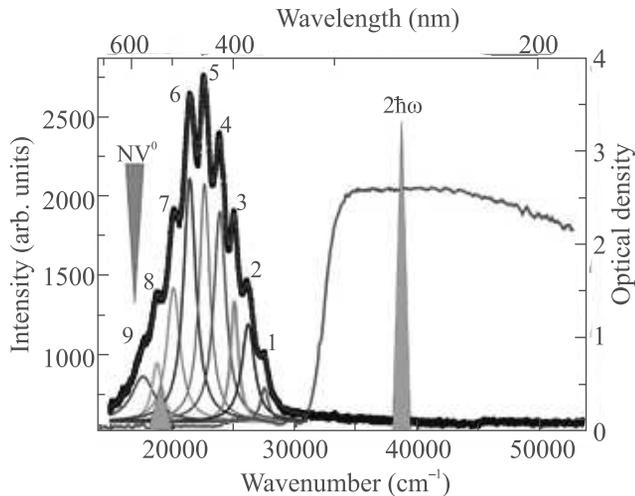


Рис. 2. (Цветной онлайн) Спектры оптической плотности (правая ось) использованного образца алмаза и тонкой структуры его фотолуминесценции при фотовозбуждении ультракороткими импульсами (левая ось, с разложением по лоренцевским полосам и суммарной огибающей кривой). Отдельно показаны положение волнового числа одного и двух фотонов лазерного излучения (зеленые треугольники), а также NV^0 -центра (синий треугольник)

как результат завершенной автолокализации, в частности, электрона. Периодическая структура спектра люминесценции допускает разложение практически без фона по девяти пикам с форм-фактором Лоренца вида

$$I(Q) = \frac{I_N \Gamma_N}{4} \frac{\Gamma_N}{(Q - Q_N)^2 + \frac{\Gamma_N^2}{4}}, \quad (1)$$

и соответствующими параметрами – интенсивностью I_N , положением пика Q_N и его шириной Γ_N , зависимости для которых от номера $N = 1-9$ представлены на рис. 3. Положения пиков пересчитаны там в их разности (сдвиги), соответствующие волновому числу (энергии) фононов q_N .

Основной особенностью зависимости $I_N(N)$ является ее немонотонность – она быстро растет до значений $n = 4-6$, там проходит через пик и далее спадает с ростом n практически до нуля (рис. 3). Быстрый рост можно связать со автостимулированным (Бозе-конденсация) характером многофононной эмиссии, где скорость испускания последующих фононов возрастает пропорционально заполнению моды N [13, 14],

$$w(N) \propto N, \quad (2)$$

что подтверждается соответствующей линейной по N аппроксимацией данного участка. Однако объяснения последующего насыщения и спада данной за-

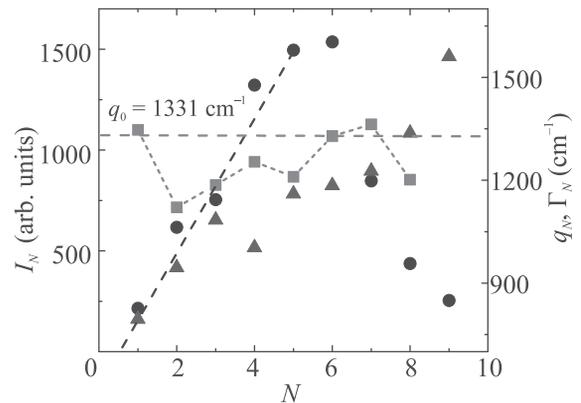


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимости интенсивности I_N (черные круги), сдвига q_N (красные квадраты) и уширения Γ_N (синие треугольники) пиков от номера N . Черная пунктирная линия показывает линейный рост интенсивности пиков в силу автостимулированного характера испускания оптического фонона (Бозе-конденсация) согласно уравнению (2), горизонтальная пунктирная линия показывает положение волнового числа невозмущенного оптического фонона в алмазе ($q_0 = 1331 \text{ cm}^{-1}$)

висимости в литературе не существует, хотя эффект наблюдался неоднократно для разных материалов.

Для объяснения немонотонного характера зависимости $I(N)$ были проанализированы связанные с ней зависимости $q_N(N)$ и $\Gamma_N(N)$ (рис. 3). Показательно, что первая зависимость демонстрирует размягчение моды сразу с началом испускания оптических фононов, которое потом релаксирует назад к исходному значению 1331 cm^{-1} [11] как раз в области максимума зависимости $I_N(N)$ (рис. 3). В этом месте разумно предположить ступенчатый, а не крайне маловероятный одноактный (мгновенный) характер многофононной эмиссии, с определенной кинетикой ступенчатого испускания. Кинетика испускания отчасти связана с шириной пиков, которая монотонно растет с увеличением N , но в разумных пределах $800-1550 \text{ cm}^{-1}$ – не более двух раз по всей периодически-модулированной области спектра. Поэтому можно предположить, что по мере протекания многофононной эмиссии на временах [7–8, 15] (оценка снизу в предположении, что ширина пиков определяется только испусканием фононов)

$$\Delta t(N) = \frac{1}{2\pi c \sum_N \Gamma_N}, \quad (3)$$

которые для условий настоящей работы при $\Gamma_N \sim 1000 \text{ cm}^{-1}$ составляют в среднем $5N$ фс (рис. 4), происходит также характерная сверхбыстрая (субпикосекундная) безызлучательная оже-рекомбинация

ЭДП [16]. Помимо собственного ангармонизма моды оптического фонона с ростом ее заселенности N , резкое снижение плотности ЭДП вызывает соответствующее ослабление электронного размягчения согласно выражению [14]

$$q_0 - q_N = q_0 \frac{\rho_{eh}}{\rho_{crit}}, \quad (4)$$

которое позволяет для известных параметров $q_0 = 1331 \text{ см}^{-1}$ и $\rho_{crit} \approx 0.05\rho_V$ [$\rho_V \approx 6 \times 10^{23} \text{ см}^{-3}$] оценить соответствующую размягчению на 200 см^{-1} начальную плотность ЭДП ρ_{eh} на уровне $5 \times 10^{21} \text{ см}^{-3}$. Заметно, что согласно кривым для q на рис. 3, 4 плотность ЭДП за времена порядка $\Delta t(4) \approx 10 \text{ фс}$ быстро падает почти в два раза ($\rho_{eh} \sim 2.5 \times 10^{21} \text{ см}^{-3}$) согласно выражению [16]

$$\Delta t(N) = \frac{1}{\gamma \rho_{eh}^2(\Delta t(N))}, \quad (5)$$

что соответствует довольно высокой величине коэффициента оже-рекомбинации $\gamma \sim 10^{-29} \text{ см}^6/\text{с}$, которая до сих пор для алмаза не оценивалась.

В результате рассмотренный спад плотности ЭДП вследствие оже-рекомбинации объясняет не только восстановление волнового числа электронно-размягченной моды оптического фонона, но и спад интенсивности пиков фотолуминесценции для $N > 6$ (рис. 3, 4). В последнем случае причиной является резкое динамическое уменьшение при $\Delta t(N > 6) > 30 \text{ фс}$ плотности свободных дырок для излучательной рекомбинации с электронами из промежуточных автолокализованных состояний. Заметим, что при $\Delta t(6) \approx 30 \text{ фс}$ плотность ЭДП падает до $\rho_{eh} < 10^{21} \text{ см}^{-3}$ (рис. 3, 4), что делает процесс радиационной рекомбинации практически незаметным на фоне автолокализации.

Действительно, несмотря на быстрое истощение ЭДП уже в течение $\sim 30 \text{ фс}$ и соответствующее выключение канала радиационной релаксации автолокализованных электронов, сам относительно независимый процесс автолокализации, в котором задействованы только электроны (или дырки) и мода оптических фононов, продолжает идти практически с той же скоростью. На это указывает монотонный, без особенностей рост величины Γ_N по мере роста N (рис. 3). В частности, для алмаза последовательное испускание девяти оптических фононов с волновым числом $\approx 1100\text{--}1300 \text{ см}^{-1}$ (энергия $\approx 0.13\text{--}0.16 \text{ эВ}$) заглубляет электронное состояние на 1.4 эВ в запрещенную зону с эффективной шириной $3.5\text{--}4 \text{ эВ}$ для данного образца алмаза – примерно в области бесфононной полосы NV^0 -центра алмаза (пик на 575 нм ,

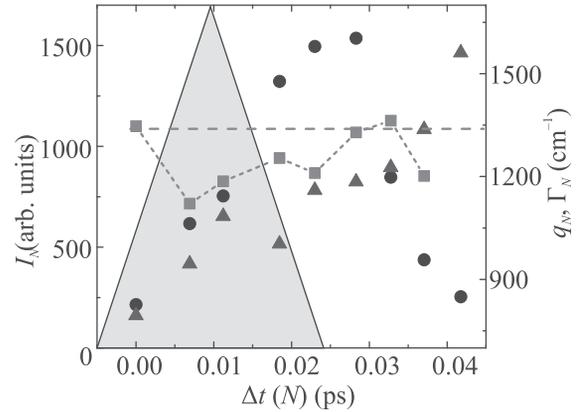


Рис. 4. (Цветной онлайн) Гипотетические зависимости интенсивности I_N , сдвига q_N и уширения Γ_N пиков от времени $\Delta t(N)$. Зеленый треугольник схематически показывает временное распределение квадрата интенсивности лазерного импульса

17400 см^{-1}) [12]. Поэтому, по аналогии с предшествующими работами [8], можно рассматривать автолокализацию как переход в состояние, как минимум, нейтральной вакансии алмаза, которая далее путем миграции по решетке легко связывается с атомом азота в положении замещения [12].

4. Автолокализация электронов, фотовозбужденных в природном алмазе при комнатной температуре в виде плотной электрон-дырочной плазмы (плотность $\sim 10^{21} \text{ см}^{-3}$) фемтосекундным лазерным импульсом видимого диапазона, протекает нестационарно на субпикосекундных временах путем ступенчатой многократной эмиссии оптического фонона в запрещенной зоне. Максимум интенсивности тонкой периодической структуры зондирующего сигнала фотолуминесценции в ходе автолокализации имеет место после автостимулированного испускания 4–6 фононов, когда энергия электронно-размягченного оптического фонона восстанавливается из-за оже-рекомбинации плазмы, а уширение пиков продолжает монотонно расти, указывая на продолжение автолокализации, предположительно, до образования френкелевской пары “вакансия-междоузлие”.

Данная работа поддержана ООО “Микролазер”.

1. W. Hayes and A. M. Stoneham, *Defects and defect processes in nonmetallic solids*, Wiley, N.Y. (1985).
2. K. S. Song and R. T. Williams, *Self-trapped excitons*, 2nd ed., Springer Series in Solid-State Sciences, Springer, N.Y. (1996), v. 105.
3. S. I. Kudryashov, A. O. Levchenko, P. A. Danilov, N. A. Smirnov, and A. A. Ionin, *Opt. Letters* **45**(7), 2026 (2020).

4. S. M. Pimenov, A. A. Khomich, B. Neuenschwander, B. Jäggi, and V. Romano, *JOSA B* **33**(3), B49 (2016).
5. I. V. Fedotov and A. M. Zheltikov, *Opt. Lett.* **44**(15), 3737 (2019).
6. S. M. Pimenov, B. Neuenschwander, B. Jäggi, and V. Romano, *Appl. Phys. A* **114**(4), 1309 (2014).
7. S. Guizard, P. Martin, G. Petite, P. d'Oliveira, and P. Meynadier, *J. Phys. Condens. Matter* **8**(9), 1281 (1996).
8. A. A. Ionin, S. I. Kudryashov, L. V. Seleznev, D. V. Sinitsyn, and T. Apostolova, *Journal of Optical Technology* **81**(5), 262 (2014).
9. Y. C. Chen, P. S. Salter, S. Knauer, L. Weng, A. C. Frangeskou, C. J. Stephen, S. N. Ishmael, P. R. Dolan, S. Johnson, B. L. Green, G. W. Morley, M. E. Newton, J. G. Rarity, M. J. Booth, and J. M. Smith, *Nat. Photonics* **11**(2), 77 (2017).
10. I. Aharonovich, A. D. Greentree, and S. Prawer, *Nat. Photonics* **5**(7), 397 (2011).
11. *Landolt-Börnstein. Numerical data and functional relationships in science and technology. New Series. Group III: Crystal and Solid State Physics. Vol. 22: Semiconductors. Subvolume a: Intrinsic Properties of Group IV Elements and III-V, II-VI and I-VII Compounds*, ed. by O. Madelung, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg-N.Y.-London-Paris-Tokyo (1987).
12. A. M. Zaitsev, *Optical properties of diamond: a data handbook*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg (2001).
13. П. Ю. М. Кардона, *Основы физики полупроводников*, Физматлит, М. (2002).
14. S. I. Kudryashov, M. Kandyla, C. Roeser, and E. Mazur, *Phys. Rev. B* **75**, 085207 (2007).
15. M. Watanabe, S. Juodkazis, H. B. Sun, S. Matsuo, and H. Misawa, *Phys. Rev. B* **60**(14), 9959 (1999).
16. С. А. Ахманов, В. И. Емельянов, Н. И. Коротеев, В. Н. Семиногов, *УФН* **147**(4), 675 (1985).
17. C. D. Spataru, L. X. Benedict, and S. G. Louie, *Phys. Rev. B* **69**(20), 205204 (2004).

Слабая связь между светом и веществом в фотонных кристаллах на основе пористого кремния приводит к усилению флуоресценции квантовых точек при двухфотонном возбуждении

И. С. Крюкова^{+*}, В. А. Кривенков⁺, П. С. Самохвалов⁺, И. Р. Набиев^{+*1)}

⁺Национальный исследовательский ядерный университет “МИФИ” (Московский инженерно-физический институт), 115409 Москва, Россия

^{*}Laboratoire de Recherche en Nanosciences, LRN-EA4682, Université de Reims Champagne-Ardenne, 51100 Reims, France

Поступила в редакцию 17 сентября 2020 г.

После переработки 30 сентября 2020 г.

Принята к публикации 2 октября 2020 г.

В настоящее время разработка оптических и, в частности, фотолуминесцентных (ФЛ) сенсоров приобретает все большее значение благодаря их универсальности, селективности и высокой чувствительности, обеспечивающих их широкое применение на практике. Повышение эффективности существующих ФЛ-сенсоров может быть достигнуто за счет использования ФЛ наноматериалов и гибридных наноструктур. При этом, для биологических применений ФЛ-сенсоров крайне актуальным является возбуждение ФЛ в ближней инфракрасной (БИК) области оптического спектра, что позволяет исключить эффект аутофлуоресценции биомолекул и обеспечить более глубокое проникновение излучения в биологические ткани. В настоящей работе изучены изменения спектральных и кинетических параметров ФЛ при двухфотонном возбуждении полупроводниковых квантовых точек (КТ), внедренных в одномерный фотонный кристалл – микрорезонатор на основе пористого кремния. Показано, что образование слабой связи между экситонным переходом в КТ и собственной модой микрорезонатора приводит к усилению ФЛ КТ. Важно, что при помещении в матрицу пористого кремния КТ сохраняют достаточный уровень сечения двухфотонного поглощения, который позволяет эффективно возбуждать их экситонные состояния вплоть до выхода на насыщение, при этом не достигая мощностей, приводящих к фото-термическому разрушению структуры пористого кремния и исчезновению эффекта слабой связи. При этом продемонстрировано 4.3-кратное увеличение скорости излучательной рекомбинации при двухфотонном возбуждении системы КТ-микрорезонатор, а также показано, что это увеличение обусловлено эффектом Парселла. Таким образом, созданные микрорезонаторы на основе одномерных кристаллов из пористого кремния позволяют управлять квантовым выходом ФЛ квантовых точек при двухфотонном возбуждении, что открывает перспективы для разработки новых ФЛ-сенсоров на основе КТ, функционирующих в БИК-области оптического спектра.

DOI: 10.31857/S1234567820210028

Фотолуминесцентные (ФЛ) свойства различных люминофоров, таких как органические красители [1, 2], флуоресцирующие нанокристаллы [3, 4], соединения редкоземельных металлов [5] и квазидвумерные дихалькогениды переходных металлов [6], можно контролировать в режимах слабой или сильной связи света с веществом. В частности, известно, что спектральные, пространственные и кинетические характеристики ФЛ люминофоров меняются при изменении локального электромагнитного поля в режиме “слабой” связи [7, 8]. Этот подход реализуем в гибридных материалах на основе люминофоров, внедренных в фотонные кристаллы со структурой мик-

рорезонаторов (МР), и представляет особый интерес для биомедицинской сенсорики, экологического контроля, контроля пищевой продукции и других областей [9–12]. Ранее была продемонстрирована возможность использования фотонных кристаллов для изготовления высокоэффективных ФЛ-сенсоров [10, 13]. Одним из наиболее перспективных материалов для создания биосенсоров на основе фотонных кристаллов является пористый кремний (ПК), в силу развитой пористой структуры, способствующей эффективному взаимодействию анализируемого вещества с поверхностью сенсора, а также простоты его изготовления [14, 15]. Тем не менее, применение большинства биологических ФЛ-сенсоров ограничено низкими яркостью и фотостабильностью органических флуорес-

¹⁾e-mail: igor.nabiev@univ-reims.fr

центных красителей, узостью их полос поглощения и, связанной с этим, необходимостью избирательно возбуждения, а также аутофлуоресценцией биологических образцов. Для того, чтобы уменьшить уровень аутофлуоресценции, обеспечить более глубокое проникновение излучения в ткани и повысить спектральное разрешение, следует проводить возбуждение ФЛ-сенсоров в ближней инфракрасной (БИК) области спектра, в так называемом “окне прозрачности” биологических тканей [16, 17]. Стоит отметить, что возбуждение в БИК-диапазоне в двухфотонном режиме позволяет получить ФЛ в видимом диапазоне. Благодаря существенно большему поперечному сечению двухфотонного поглощения квантовых точек (КТ), по сравнению с органическими красителями, использование КТ позволяет достигнуть большей яркости этих полупроводниковых люминофоров [18–20]. Кроме этого, благодаря рекордно высокой фотостабильности [21, 22] и высокому квантовому выходу ФЛ [23], широким спектрам одно- и двухфотонного поглощения [24, 25] и узким спектрам ФЛ, КТ становятся идеальными оптическими метками для сенсинга при двухфотонном возбуждении в БИК-диапазоне.

В настоящей работе были изучены свойства спонтанной ФЛ квантовых точек структуры CdSe(ядро)/ZnS/CdS/ZnS(многослойная оболочка), внедренных в МР из ПК (ПК-МР), в режиме двухфотонного возбуждения в БИК-области оптического спектра. Были измерены спектры ФЛ и кинетика ФЛ этой системы при двухфотонном возбуждении, а также зависимость спектров ФЛ от мощности возбуждающего излучения. На длине волны, соответствующей собственной моде ПК-МР, наблюдалось усиление ФЛ КТ. В то же время, в фотонной запрещенной зоне ФЛ подавлялась. Модификация спектра ФЛ КТ внутри ПК-МР обусловлена спецификой локальной плотности оптических состояний в МР и различием скоростей релаксации сигнала ФЛ в рассматриваемом диапазоне. Было показано, что интенсивность ФЛ на длине волны собственной моды МР возросла в 4.3 раза, что связано с образованием режима слабой связи между экситонным переходом КТ и собственной модой ПК-МР.

Квантовые точки CdSe(ядро)/ZnS/CdS/ZnS (многослойная оболочка) были получены методом горячей инъекции [26]. На рисунке 1 представлены спектры поглощения и ФЛ раствора КТ в гексане. КТ в растворе характеризуются широкой полосой поглощения с первым экситонным максимумом около 536 нм. Спектр ФЛ раствора КТ аппроксими-

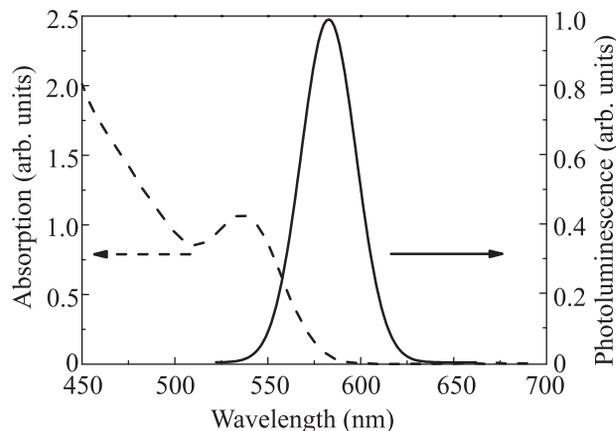


Рис. 1. Спектры поглощения (штриховая кривая) и фотолуминесценции (сплошная кривая) раствора квантовых точек CdSe(ядро)/ZnS/CdS/ZnS(многослойная оболочка) в гексане

руется симметричной кривой Гаусса с максимумом на 560 нм и полной шириной на половине высоты (ПШПВ) около 40 нм.

Микрорезонаторы готовили из ПК методом электрохимического травления, как описано в работах [27, 28]. МР Фабри–Перо состоял из двух четверть-волновых распределенных брэгговских отражателей с 5 и 20 парами чередующихся слоев с высокой (75 %) и низкой (58 %) пористостью, разделенных высокопористым слоем двойной толщины, образующим $\lambda/2$ -резонатор. После изготовления ПК-МР подвергали термическому окислению для предотвращения тушения ФЛ КТ за счет взаимодействия с поверхностью ПК, и обрабатывали гексадецилтриметоксисилоном для придания поверхности гидрофобности и облегчения внедрения КТ из раствора [29]. На рисунке 2 показан спектр отражения ПК-МР и микрофотография его поперечного сечения, полученная с помощью сканирующей электронной микроскопии (на вставке). Как можно видеть из микрофотографии, слои с высокой и низкой пористостью образуют два распределенных брэгговских отражателя с относительно равномерным распределением пор, диаметры которых находятся в диапазоне от 10 до 20 нм.

Ширина фотонной запрещенной зоны ПК-МР составляла около 154 нм (от 522 до 676 нм); длина волны собственной моды была равна 581 нм, а значение показателя добротности было около 63. Указанные параметры структуры ПК-МР были выбраны таким образом, чтобы совместить спектральное положение максимума излучения КТ (рис. 1) и собственной моды ПК-МР, и при этом подавить ФЛ в остальных областях неоднородно уширенного спектра ФЛ, где связь “свет–вещество” не возникала. Выбранные па-

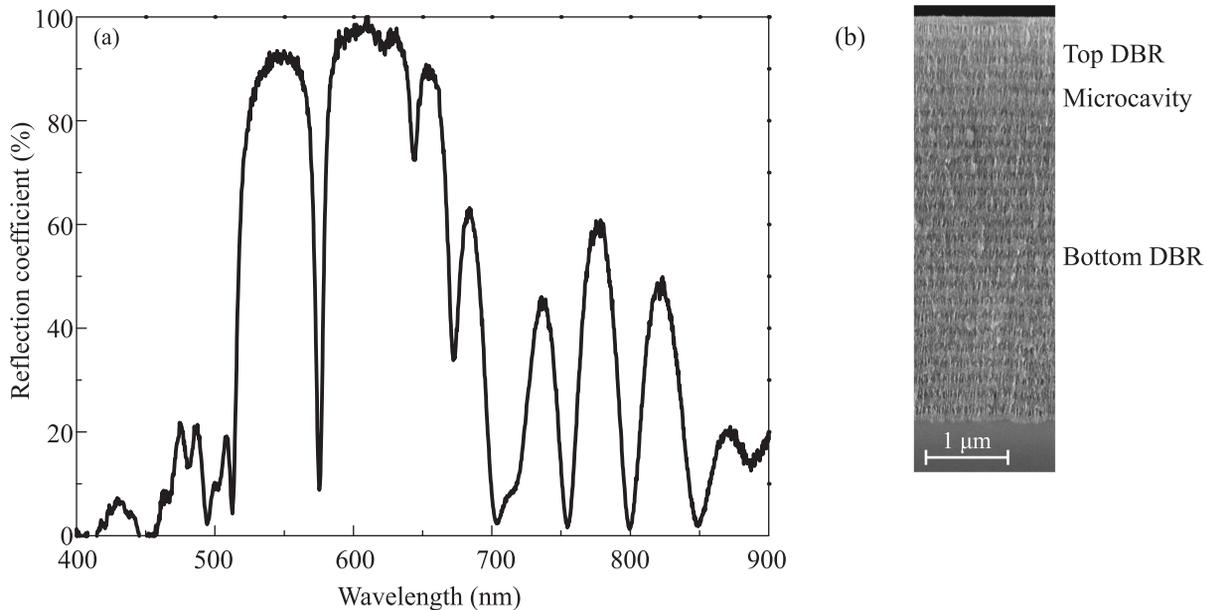


Рис. 2. Спектр отражения микрорезонатора из ПК (а) и фотография поперечного сечения (б) микрорезонатора из ПК, полученная с помощью сканирующего электронного микроскопа

раметры позволили добиться усиления ФЛ подавляющей части ансамбля КТ, внедренных в ПК-МР.

Квантовые точки внедряли в структуры из ПК путем нанесения на его поверхность 5 мкл раствора КТ в гексане с концентрацией около 0.5 мг/мл. Описанная выше обработка поверхности ПК путем термического окисления и силанизации, а также надлежащая морфология ПК, обеспечивающая высокий уровень капиллярных сил [1], способствовали равномерному распределению КТ внутри ПК-МР [30]. Характеристики ФЛ в режиме двухфотонного возбуждения изучали с помощью фемтосекундной лазерной системы Tsunami (Spectra Physics, США) с длительностью импульса 60 фс, регулируемой энергией импульса и частотой импульсов 80 МГц, работающей на длине волны 800 нм. Расхождение лазерного луча составляло около 10^{-3} . Измерения проводили в конфокальной геометрии: с помощью линзы с фокусным расстоянием 30 мм лазерный луч фокусировали на образце для возбуждения ФЛ, и с помощью той же линзы фокусировали сигнал ФЛ. Для спектрального разрешения и регистрации сфокусированного сигнала использовали монохроматор-спектрограф M266 (Solar Laser Systems, Беларусь). Измерения с временным разрешением проводили с помощью системы счета единичных фотонов с корреляцией во времени, на основе электронного модуля Pico Harp 300 (PicoQuant) и однофотонного лавинного диода (Micro Photon Devices), при этом аппаратная функция системы составляла 200 пс. Для

этого также дополнительно использовался модуль прореживания лазерных импульсов (Model 3980-6M SpectraPhysics), обеспечивающий частоту следования импульсов от 1.6 МГц, длительность импульса 200–300 фс и энергию импульса до 8 нДж на длине волны 790 нм.

На рисунке 3 показаны спектры ФЛ КТ, внедренных в ПК-МР, полученные при двухфотонном возбуждении лазерным БИК-излучением с мощностью накачки от 30 до 350 мВт. Важно отметить, что спектры ФЛ КТ при одно- и двухфотонном режимах возбуждения не отличались. Из рисунка 3а видно, что после внедрения КТ в структуру ПК-МР, спектры ФЛ КТ расщепляются на два пика. Максимум первого пика приходится на 575 нм, и его ПШПВ составляет около 15 нм, т.е. его спектральное положение соответствует длине волны собственной моды МР. Этот пик может быть связан с эффектом слабой связи экситонного перехода в КТ с собственной модой МР [5, 22]. Второй пик, на длине волны 550 нм, имеет ту же ПШПВ, что и КТ в растворе (около 40 нм), и, вероятно, обусловлен несвязанной частью ансамбля КТ, излучение которых частично подавлено внутри фотонной запрещенной зоны из-за пониженной локальной плотности оптических состояний.

В то же время, максимум ФЛ несвязанных КТ в ПК-МР сдвинут относительно максимума спектра ФЛ КТ в растворе на 10 нм в синюю область спектра. Следует отметить, что однородное и неоднородное уширения вносят почти одинаковый вклад в сум-

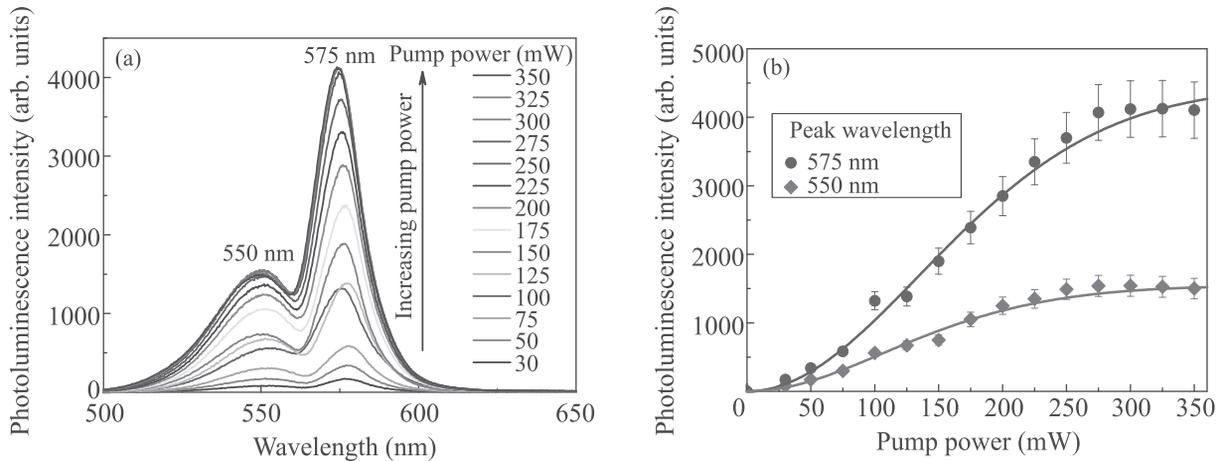


Рис. 3. (Цветной онлайн) Спектры ФЛ КТ CdSe(ядро)/ZnS/CdS/ZnS(многослойная оболочка) внутри микрорезонатора из ПК при двухфотонном возбуждении. (a) – Спектры ФЛ КТ внутри микрорезонатора при двухфотонном возбуждении при разных мощностях накачки лазера; (b) – зависимости интенсивности ФЛ от мощности накачки на длинах волн 575 нм (синяя кривая) и 550 нм (зеленая кривая) соответственно

марное уширение спектра ФЛ КТ. Однако связь с собственной модой МР образуют экситонные переходы только тех КТ, у которых спектральное положение максимума однородно уширенного спектра ФЛ совпадает с положением собственной моды МР. Поскольку изначально максимум ФЛ КТ был сдвинут на 15 нм в синюю область относительно собственной моды МР, после внедрения КТ в ПК-МР смешанный характер уширения спектра и спектрального сдвига привел к выделению в ансамбле КТ двух подансамблей. Один из подансамблей КТ эффективно образовывал связь с собственной модой МР, что приводило к появлению узкого пика ФЛ на длине волн, соответствующей собственной моде МР, тогда как ФЛ второго подансамбля КТ сдвигалась в синюю область спектра и подавлялась в фотонной запрещенной зоне ПК-МР вследствие низкой локальной плотности оптических состояний.

Графики зависимостей интенсивностей обоих пиков ФЛ от мощности возбуждающего лазерного излучения косвенно показывают, что ФЛ на этих длинах волн различается по скорости излучательной релаксации (рис. 3b). По мере повышения интенсивности возбуждающего излучения можно видеть, что характер этих зависимостей меняется с квадратичного на практически линейный. При достижении достаточно высокой мощности возбуждающего излучения наблюдается насыщение двухфотонного поглощения, и зависимость интенсивностей пиков ФЛ достигает плато. Тем не менее, значение мощности возбуждающего излучения, при котором наступает насыщение двухфотонного поглощения, отличается для рассматриваемых пиков ФЛ: для пика на длине

волны 550 нм насыщение достигается при мощности примерно на 25 % меньшей, чем для пика на 575 нм. Недавно было показано, что при возбуждении лазерным излучением с высокой частотой импульсов (в нашей работе – 80 МГц) увеличение времени жизни ФЛ значительно снижает порог насыщения поглощения [24]. Данные на рис. 3b были аппроксимированы формулой из работы [24] в предположении, что единственной причиной различия порогов насыщения является разница во временах жизни ФЛ, а поперечное сечение двухфотонного поглощения КТ было одним и тем же для обоих пиков. Таким образом, если время жизни ФЛ для пика на длине волны 550 нм равно периоду повторения возбуждающих импульсов (12.5 нс) или превышает его, то время жизни ФЛ для пика на 575 нм должно быть значительно меньше этого периода. К сожалению, наша экспериментальная установка не позволяла точно измерить скорости излучательной релаксации для этих двух пиков, но полученные результаты говорят о том, что время жизни ФЛ для пика на длине волны 575 нм было действительно меньше, чем для пика на 550 нм, что свидетельствует о наличии эффекта Парселла.

Для того, чтобы количественно оценить эффект Парселла и исключить влияние безызлучательных процессов при взаимодействии КТ с поверхностью ПК, было проведено сравнение кинетики ФЛ КТ в ПК-МР, монослое ПК и в матрице полиметилметакрилата (ПММА) на стеклянной подложке. Пористость монослоя ПК была около 66 %, а степень окисления та же, что у ПК-МР. На рисунке 4 приведены соответствующие кривые затухания ФЛ. Суммарное время релаксации ФЛ КТ в ПК-МР и в монослое

Таблица 1. Параметры экспоненциальной аппроксимации кривых затухания ФЛ КТ в микрорезонаторах из ПК, на монослое ПК, и на стекле

	Время жизни ФЛ, нс	Скорость излучательной релаксации, нс ⁻¹	Скорость безызлучательной релаксации, нс ⁻¹	Квантовый выход ФЛ, %
Микрорезонатор из ПК	5.8 ± 0.5*	0.124 ± 0.017	0.048 ± 0.009	72 ± 11
Монослой ПК	12.8 ± 1.5	0.030 ± 0.002	0.048 ± 0.009	38 ± 13
На стекле	29.9 ± 0.5	0.030 ± 0.002	0.003 ± 0.002	90 ± 5

*Все погрешности приведены как с учетом погрешности аппроксимации, так и с учетом приборной погрешности.

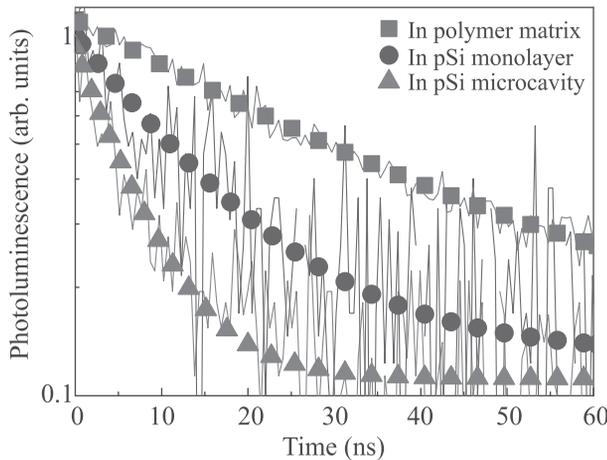


Рис. 4. (Цветной онлайн) Экспериментальные кривые затухания ФЛ (сплошные кривые) и их аппроксимация (точки) для КТ, внедренных в полимерную матрицу на стеклянной подложке (зеленые кривые), в монослой ПК (синие кривые) и в микрорезонатор из ПК (красные кривые)

рассчитывали на основе весовых коэффициентов амплитуды [31]. В таблице 1 приведены результаты биэкспоненциальной аппроксимации кривых. Времена затухания ФЛ для ПК-МР и для монослоя ПК оказались меньшими, чем для КТ в полимерной матрице на стеклянной подложке (рис. 4 и табл. 1). При этом экспериментальная кривая для пленки КТ в матрице ПММА аппроксимируется моноэкспоненциальной функцией со временем затухания около 30 нс, которое приблизительно совпадает с этой величиной для раствора КТ в гексане.

Кривые затухания ФЛ КТ в ПК-МР и в монослой ПК аппроксимировались экспоненциальной функцией. Так как поверхность ПК хорошо развита (до 800 м²/см³) [27], значительная часть внедренных КТ находилась вблизи поверхности ПК. Это способствовало безызлучательной релаксации люминофоров и сокращало суммарное время затухания ФЛ. Быстрая и медленная компоненты затухания могут быть обусловлены расположением КТ непосредственно на

поверхности пор и внутри них соответственно. Среднее время затухания ФЛ КТ в ПК-МР было приблизительно в 2.2 раза меньше, чем в монослой ПК. В случае КТ в полимерной матрице отсутствуют дополнительные пути безызлучательной релаксации по сравнению с раствором КТ, что позволяет оценить фактор Парселла, характеризующий изменение скорости излучательной релаксации. Для этого использовали стандартную формулу для квантового выхода (КВ) ФЛ:

$$QY = \Gamma_r / (\Gamma_r + \Sigma \Gamma_{nr}), \quad (1)$$

где Γ_r – скорость излучательной релаксации, $\Sigma \Gamma_{nr}$ – суммарная скорость всех безызлучательных процессов релаксации. Для КТ в растворе КВ ФЛ достигал 90 ± 5 %, а кинетика затухания ФЛ была такой же, как у КТ, внедренных в матрицу ПММА на стеклянной подложке, со временем затухания 29.9 ± 0.5 нс. Исходя из этих данных, скорость излучательной релаксации вне ПК была оценена равной около 0.030 ± 0.003 нс⁻¹. При внедрении КТ в ПК-МР или монослой из ПК возникают дополнительные процессы безызлучательной релаксации, обусловленные взаимодействием КТ с поверхностью ПК. Согласно уравнению (1), сумма скоростей безызлучательных процессов в монослой ПК составляет 0.048 ± 0.009 нс⁻¹, что равносильно снижению КВ до 38 ± 13 %. Скорость излучательной релаксации КТ в ПК-МР была оценена равной 0.124 ± 0.017 нс⁻¹, а КВ ФЛ – 72 ± 11 %, в предположении, что безызлучательные процессы в ПК-МР и монослой ПК влияют на ФЛ КТ одинаковым образом. Наконец, фактор Парселла, равный отношению скоростей КТ в ПК-МР и растворе, был получен равным 4.1 ± 0.6.

Таким образом, в настоящей работе исследованы спектральные и кинетические характеристики спонтанной ФЛ при двухфотонном возбуждении КТ, внедренных в одномерные ПК-МР. Экситонные переходы КТ образуют режим слабой связи с собственной модой ПК-МР. Изучено влияние мощности двухфотонного возбуждения на спектры спонтанной ФЛ КТ. Для подансамбля КТ, эффективно связанных с

собственной модой ПК-МР, при повышении мощности двухфотонного возбуждения не наблюдается ни порога насыщения поглощения, ни эффекта сужения спектра ФЛ. Продемонстрированы значительные изменения спектра ФЛ при внедрении КТ в ПК-МР, по сравнению со спектром ФЛ КТ в растворе, вызванные модификацией скорости релаксации ФЛ различных компонент ансамбля КТ. Для экситонных переходов КТ, связанных с собственной модой ПК-МР, наблюдается увеличение скорости излучательной релаксации в 4.3 раза по сравнению с КТ в растворе и, следовательно, усиление ФЛ КТ, что свидетельствует об эффекте Парселла и установлении режима слабой резонансной связи света с веществом.

Благодаря своему большому поперечному сечению двухфотонного поглощения, КТ представляют значительный интерес для разработки биосенсоров в БИК-области оптического спектра, являющейся “окном прозрачности” для биологических тканей. Для того, чтобы нивелировать снижение КВ ФЛ, наблюдающееся при взаимодействии КТ со средой ввиду возникновения дополнительных безызлучательных процессов, в данной работе используются ПК-МР в качестве матрицы для внедрения КТ. Был продемонстрирован режим слабой связи между экситонными переходами КТ и собственной модой ПК-МР, а также существенное увеличение КВ ФЛ внедренных КТ при двухфотонном возбуждении ФЛ. Показано, что при помещении в матрицу ПК КТ сохраняют достаточный уровень сечения двухфотонного поглощения, который позволяет эффективно возбуждать их экситонные состояния вплоть до выхода на насыщение, при этом не достигая мощностей, приводящих к фото-термическому разрушению структуры ПК и исчезновению эффекта слабой связи. Полученные результаты свидетельствуют о высоком потенциале применения КТ для разработки новых ФЛ биосенсоров в прозрачном для биологических образцов БИК-диапазоне оптического спектра.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 18-29-20121), а также Российского научного фонда (грант # 20-13-00358) в части работы, связанной с разработкой подходов к синтезу и функционализации квантовых точек для их использования в резонаторах.

1. N. A. Tokranova, S. W. Novak, J. Castracane, and I. A. Levitsky, *J. Phys. Chem. C* **117**, 22667 (2013).
2. D. Dovzhenko, K. Mochalov, I. Vaskan, I. Kryukova, Y. Rakovich, and I. Nabiev, *Opt. Express* **27**, 4077 (2019).

3. H. Qiao, B. Guan, T. Böcking, M. Gal, J. J. Gooding, and P. J. Reece, *Appl. Phys. Lett.* **96**, 161106 (2010).
4. C. Becker, S. Burger, C. Barth, P. Manley, K. Jäger, D. Eisenhauer, G. Köppel, P. Chabera, J. Chen, K. Zheng, and T. Pullerits, *ACS Photonics* **5**, 4668 (2018).
5. S. N. A. Jenie, S. Pace, B. Sciacca, R. D. Brooks, S. E. Plush, and N. H. Voelcker, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **6**, 12012 (2014).
6. X. Gan, Y. Gao, K. Fai Mak, X. Yao, R. J. Shiue, A. van der Zande, M. E. Trusheim, F. Hatami, T. F. Heinz, J. Hone, and D. Englund, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 1 (2013).
7. H. Yokoyama, K. Nishi, T. Anan, Y. Nambu, S. D. Brorson, E. P. Ippen, and M. Suzuki, *Opt. Quantum Electron.* **24**, S245 (1992).
8. M. Pelton, *Nat. Photonics* **9**, 427 (2015).
9. S. Arshavsky-Graham, N. Massad-Ivanir, E. Segal, and S. Weiss, *Anal. Chem.* **91**, 441 (2019).
10. C. Fenzl, T. Hirsch, and O. S. Wolfbeis, *Angew. Chemie Int. Ed.* **53**, 3318 (2014).
11. S. Mariani, V. Robbiano, L. M. Strambini, A. Debrassi, G. Egri, L. Dähne, and G. Barillaro, *Nat. Commun.* **9**, 5256 (2018).
12. V. Robbiano, G. M. Paternò, A. A. La Mattina, S. G. Motti, G. Lanzani, F. Scotognella, and G. Barillaro, *ACS Nano* **12**, 4536 (2018).
13. D. Threm, Y. Nazirizadeh, and M. Gerken, *J. Biophotonics* **5**, 601 (2012).
14. C. Pacholski, *Sensors* **13**, 4694 (2013).
15. M. B. de la Mora, M. Ocampo, R. Doti, J. E. Lugo, and J. Faubert, in *State of the Art in Biosensors – General Aspects*, InTech, London (2013).
16. A. M. Smith, M. C. Mancini, and S. Nie, *Nat. Nanotechnol.* **4**, 710 (2009).
17. P. T. C. So, C. Y. Dong, B. R. Masters, and K. M. Berland, *Annu. Rev. Biomed. Eng.* **2**, 399 (2000).
18. H. Hafian, A. Sukhanova, M. Turini, P. Chames, D. Baty, M. Pluot, J. H. M. Cohen, I. Nabiev, and J.-M. Millot, *Nanomedicine Nanotechnology, Biol. Med.* **10**, 1701 (2014).
19. V. Krivenkov, P. Samokhvalov, D. Solovyeva, R. Bilan, A. Chistyakov, and I. Nabiev, *Opt. Lett.* **40**, 1440 (2015).
20. V. Krivenkov, P. Samokhvalov, and I. Nabiev, *Biosens. Bioelectron.* **137**, 117 (2019).
21. V. Krivenkov, P. Samokhvalov, M. Zvaigzne, I. Martynov, A. Chistyakov, and I. Nabiev, *J. Phys. Chem. C* **122**, 15761 (2018).
22. W. G. J. H. M. van Sark, P. L. T. M. Frederix, A. A. Bol, H. C. Gerritsen, and A. Meijerink, *Chem. Phys. Chem.* **3**, 871 (2002).

23. P. Linkov, P. Samokhvalov, K. Vokhmintsev, M. Zvaigzne, V. A. Krivenkov, and I. Nabiev, *JETP Lett.* **109**, 112 (2019).
24. V. Krivenkov, P. Samokhvalov, D. Dyagileva, A. Karaulov, and I. Nabiev, *ACS Photonics* **7**, 831 (2020).
25. R. Scott, A. W. Achtstein, A. Prudnikau, A. Antanovich, S. Christodoulou, I. Moreels, M. Artemyev, and U. Woggon, *Nano Lett.* **15**, 4985 (2015).
26. P. Samokhvalov, P. Linkov, J. Michel, M. Molinari, and I. Nabiev, *Proc. SPIE, Colloidal Nanoparticles for Biomedical Applications IX* **8955**, 89550S (2014).
27. M. J. Sailor, in *Porous Silicon in Practice: Preparation, Characterization and Applications*, Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Weinheim, Germany (2011), p. 76.
28. D. Dovzhenko, I. Martynov, P. Samokhvalov, E. Osipov, M. Lednev, A. Chistyakov, A. Karaulov, and I. Nabiev, *Opt. Express* **28**, 22705 (2020).
29. A. E. Pap, K. Kordäs, G. Toth, J. Levoska, A. Uusimäki, J. Vähäkangas, S. Leppävuori, and T. F. George, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 041501 (2005).
30. D. S. Dovzhenko, I. L. Martynov, P. S. Samokhvalov, K. E. Mochalov, A. A. Chistyakov, and I. Nabiev, *Proc. SPIE – Int. Soc. Opt. Eng.* **9885**, 988507 (2016).
31. J. R. Lakowicz, in *Principles of Fluorescence Spectroscopy*, Springer, New York City (2006).

Ударное акустическое излучение при столкновении капли изменяющейся формы с поверхностью воды

В. Е. Прохоров¹⁾

Институт проблем механики им. А. Ю. Ишлинского РАН, 119526 Москва, Россия

Поступила в редакцию 26 июня 2020 г.
После переработки 17 сентября 2020 г.
Принята к публикации 29 сентября 2020 г.

Излучение звука на стадии сверхзвукового расширения контактного пятна при столкновении капли с водной поверхностью рассматривается в теоретической и экспериментальной постановке. Измерения акустических сигналов проведены с одновременной видеорегистрацией падающей капли. Амплитуда ударного импульса не зависит от формы подводного сегмента капли, она определяется только скоростью соударения и текущими геометрическими параметрами надводного сегмента, форма которого фиксируется на момент последнего перед столкновением видеокадра. Огибающая формы аппроксимируется непрерывной функцией, с помощью которой моделируется сверхзвуковое расширение контактного пятна, рассчитывается амплитуда ударного импульса. Близость расчетных и экспериментальных данных подтверждают стабильность формы надводного сегмента капли во время излучения ударного импульса.

DOI: 10.31857/S123456782021003X

Акустическое излучение при столкновении капли с поверхностью воды исследуется на протяжении многих десятилетий как фундаментальная проблема, а также в рамках прикладных наук – метеорологии (неконтактное измерение интенсивности осадков на удаленных акваториях [1–3], акустики океана (модель шумового фона океана [4, 5]), в интересах флота (малозумность испытательных полигонов [6]), экологии (защита морских животных [7]).

Практический интерес представляют эффекты, создаваемые множеством капель, однако наибольшее количество работ посвящено именно одиночным каплям, так как данная постановка позволяет детализировать физические механизмы излучения.

Природа излучения двойка – в начальной стадии (несколько наносекунд) излучается ударный звуковой импульс, основной спектр которой находится в высокочастотной области. Механизм ударного излучения – сверхзвуковое расширение контактного пятна, образуемого каплей с поверхностью [8–10]. Ударный импульс устойчиво появляется при каждом столкновении при условии, что конечная скорость капли превышает пороговое значение, определяемое поверхностным натяжением и вязкостью [11].

На последующих стадиях (десятки миллисекунд после контакта) вступает в действие резонансное звучание воздушных пузырей, отрывающихся от подводных каверн [12, 13]. Спектр резонансного излуче-

ния лежит в области существенно более низких частот. Данный тип излучения не отличается высокой повторяемостью и стабильностью – размеры отрывающихся пузырей, а также их количество, заметно разнятся от опыта к опыту, и в результате сильно различаются параметры излучаемых звуковых пакетов – частота, амплитуда, длительность [14].

Первые комплексные измерения акустического излучения одиночных капель в полосе частот 0.1–100 кГц с одновременной киносъемкой (80 к/с) проведены в 1959 г. [8]. В экспериментах выделены ударная и резонансная компоненты, вычислены спектры излучаемого звука и сопоставлены с аналогичными спектрами акустического излучения, генерируемого искусственным дождем на водной поверхности. Аналогичные эксперименты проводились и впоследствии [13, 15], однако их общая особенность – ограниченность полосы акустических измерений (не выше 200 кГц) в пользу ее равномерности, что обеспечивало качественное воспроизведение амплитуды во всей полосе, но было явно недостаточно для восстановления фронта ударного импульса.

Аналитическое описание ударного излучения звука при столкновении капли с жидкостью построено на основе заимствований из теории, разработанной для твердой сферы, соударяющейся с поверхностью жидкости [8, 16]. В развитие аналогии рассматривается капля правильной формы – сферической [9], или сфероидальной [10]; последующий анализ основан на том, что форма капли сохраняется неизмен-

¹⁾e-mail: prohorov@ipmnet.ru

ной (включая ее подводный сегмент) в течение стадии сверхзвукового расширения контактного пятна. Благодаря этому получают простые формулы параметров контактного пятна – радиуса и скорости расширения, которые входят в конечное выражение для ударного импульса [9, 17].

Однако форма капли обычно далека от идеальной – во время падения капли осциллирует [18], при подлете к поверхности дополнительно деформируется ее донный сегмент [19, 20], и на момент контакта она превращается в неправильный сфероид [21]. В серии повторяющихся опытов конечная форма капли меняется случайным образом, а сопутствующие ударные акустические импульсы столь же случайно меняются по амплитуде от опыта к опыту [21], не имея видимой связи с теорией.

Результаты теории и эксперимента удается сблизить, если в расчетах вместо исходного интегрального радиуса взять локальный радиус плоского изображения капли. Локальный радиус можно измерить одним из возможных способов – путем осреднения по множеству радиусов эквивалентной (т.е. восстановленной по трем точкам) окружности [11], или по кривизне профиля вертикального сечения капли. Для обеспечения точности требуется высокая степень дискретизации контактной зоны на временном интервале порядка 10 нс. Однако инструменты, способные обеспечить такое разрешение, пока отсутствуют.

Идеализации капли не позволяет экспериментально обосновать теорию: сложно создать условия, в которых капля к моменту столкновения имеет правильную форму. С другой стороны, для реальной капли с произвольной формой невозможно в течение наносекундного интервала осуществить достаточно пространственное разрешение, позволяющее выделить геометрические параметры, определяющие ударное излучение.

В настоящей работе предложена конечная формула ударного импульса, в которую вместо характерных размеров капли входят текущие параметры контактного контура и показатель формы капли на сверхзвуковой стадии. Проверка формулы проводится методом математического моделирования, в котором исходными данными являются зарегистрированные в эксперименте ударный импульс и видеокadres капли.

Оцифрованная огибающая капли, зафиксированной на последнем перед приводнением видеокadre, аппроксимируется непрерывной функцией, посредством которой в аналитическом виде моделируется расширение контактного контура с достаточным для

сверхзвуковой стадии временным разрешением. Выходные данные моделирования – геометрические параметры контактного контура используются для расчета амплитуд ударного давления, которые сравниваются с измеренными в эксперименте. Метод не лишен недостатка: временной промежуток от последнего кадра до столкновения меняется случайным образом, что снижает степень соответствия модельного профиля его реальному виду и приводит к случайным отклонениям вычисляемого ударного давления.

Рассматривается случай с осевой симметрией, когда ударное излучение принимается в точке на продолжении линии падения капли (рис. 1). Выбор простой геометрии позволяет провести экспериментальную проверку с помощью единственного гидрофона.

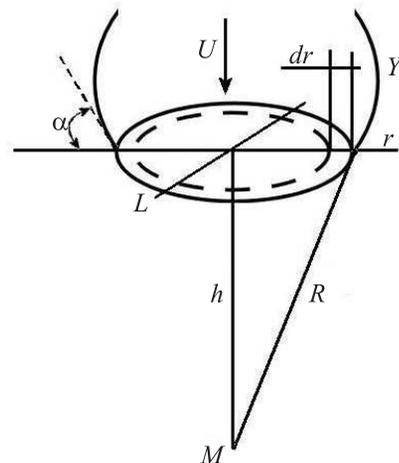


Рис. 1. Геометрия задачи при соударении капли с поверхностью. Y – свободная поверхность капли; L – контур сечения капли поверхностью жидкости; M – точка приема излучения

Форма и скорость капли принимаются фиксированными на момент съемки последнего перед приводнением кадра. Форма донного сегмента – одновыпуклая, в отличие от случая высокоскоростного соударения капли с твердой поверхностью, где отчетливо наблюдается двугорбая форма [22].

Излучение звука при радиальном расширении контура L со сверхзвуковой скоростью эквивалентно суммарному действию распределенных по контуру элементарных источников объемом dV и плотностью q , так что каждый из них характеризуется объемной скоростью $dQ = q \cdot dV$.

Уравнение распространения звука возьмем в виде [23]

$$\Delta p - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 p}{\partial t^2} = -\rho \frac{\partial q}{\partial t},$$

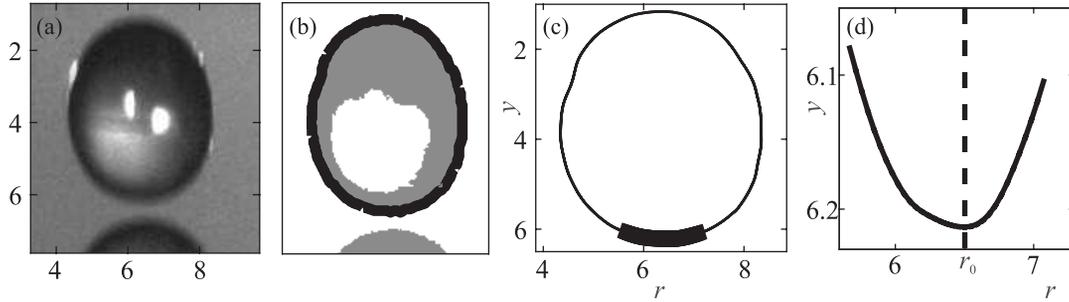


Рис. 2. Вид (а) капли непосредственно перед приводнением; контур (черный) вокруг бинарного изображения капли (b), контур в координатах r, y (с) с выделенным участком, аппроксимирующая кривая выделенного участка (d) вблизи точки контакта r_0 . Деления в мм

стандартное решение которого

$$p(R, t) = \rho \frac{d}{dt} \int_V \frac{dQ(\tau)}{4\pi R},$$

где $\tau = t - R/c$, c – скорость звука в воде.

При заданной геометрии (рис. 1) $h = \text{const}$ и $r \cdot dr = R \cdot dR$, поэтому $dQ = U \cdot dS = U \cdot 2\pi r \cdot dr = 2\pi UR \cdot dR$ и

$$p(R, t) = \frac{\rho}{2} \frac{d}{dt} \int_h^{R(\tau)} U \cdot dR = \frac{\rho U}{2} \frac{dR(\tau)}{dt}. \quad (1)$$

Далее,

$$\frac{dR(\tau)}{dt} = \frac{dR(\tau)}{d\tau} \frac{d\tau}{dt} = \frac{dR(\tau)}{d\tau} \left(1 - \frac{1}{c} \frac{dR(\tau)}{dt} \right),$$

откуда, обозначив $dR(\tau)/d\tau = \dot{R}(\tau)$,

$$\frac{dR(\tau)}{dt} = \frac{c}{1 + c/\dot{R}(\tau)}. \quad (2)$$

Подстановка (2) в (1) дает

$$p(R, t) = \frac{\rho U}{2} \frac{c}{1 + c/\dot{R}(\tau)}. \quad (3)$$

Сделав замену $\dot{R} = \dot{r}r/R$, и, учитывая $R = \sqrt{h^2 + r^2} \approx h$ ввиду $r \ll h$ (размер излучающего контура исчезающе мал в сравнении с любым из характерных размеров задачи), получим из (3)

$$p(r, t) = \frac{\rho U c}{2} \left(1 + \frac{c}{\dot{r}r} \right)^{-1}. \quad (4)$$

Из геометрии задачи (рис. 1) следует $\dot{r} = U \text{ctg } \alpha$, $\text{ctg } \alpha = (dy/dr)^{-1}$, где α – угол между касательной к профилю вертикального сечения капли и осью r . Произведение $\dot{r}r$ в момент контакта представляет собой неопределенность вида $\infty \cdot 0$, так как $\text{ctg } \alpha = \infty$

и $r = 0$ при $\tau = 0$. Для разрешения неопределенности локальный радиус капли R_d в точке касания должен быть конечной величиной (для этого достаточно отличной от нуля второй производной кривой Y на рис. 1 в точке касания). Поскольку в течение всей сверхзвуковой стадии выполняется $\alpha \approx 0$, то $r = R_d \cdot \sin \alpha$ и $\dot{r}r = U \cdot R_d \cos \alpha \approx UR_d$. При $R_d \ll h \cdot c/U$ (4) переходит в

$$p(r, t) = \frac{\rho U^2 r}{2h} \text{ctg } \alpha. \quad (5)$$

Входящие в (5) локальные геометрические параметры $r(\tau)$ и $\alpha(\tau)$ относятся к надводному сегменту капли, примыкающему к поверхности со стороны воздушной среды. В формуле отсутствуют параметры неконтролируемого подводного сегмента – при дозвуковой скорости капли он не может влиять на уходящий под воду ударный фронт, так как отстанет от фронта на расстояние $(c - U)t$; приняв форму подводного сегмента неизменной, мы не нарушаем условий распространения ударной волны. Кроме того, на временном отрезке $t < t_c$ граница надводного сегмента остается невозмущенной, так как возбужденные элементарные волны не успевают за ней ($\dot{r} > c$). Другими словами, можно считать, что на сверхзвуковой стадии форма капли неизменна, и, если каплю заменить на твердое тело, скорость и форма которого такие же, как и у капли на момент контакта, то амплитуда ударного излучения не изменится.

Радиус контура $r(t)$, ограничивающего окружность сечения капли поверхностью, определяется решением $y(r) - Ut = 0$, где $y(r)$ – участок огибающей $Y(r)$ плоского изображения (видеокадра) капли. Сама огибающая Y получена специальной компьютерной обработкой, выделяющей на видеокадре (рис. 2а) высокоградиентную границу изображения капли (рис. 2b, c) согласно методике [24, 25]. Уча-

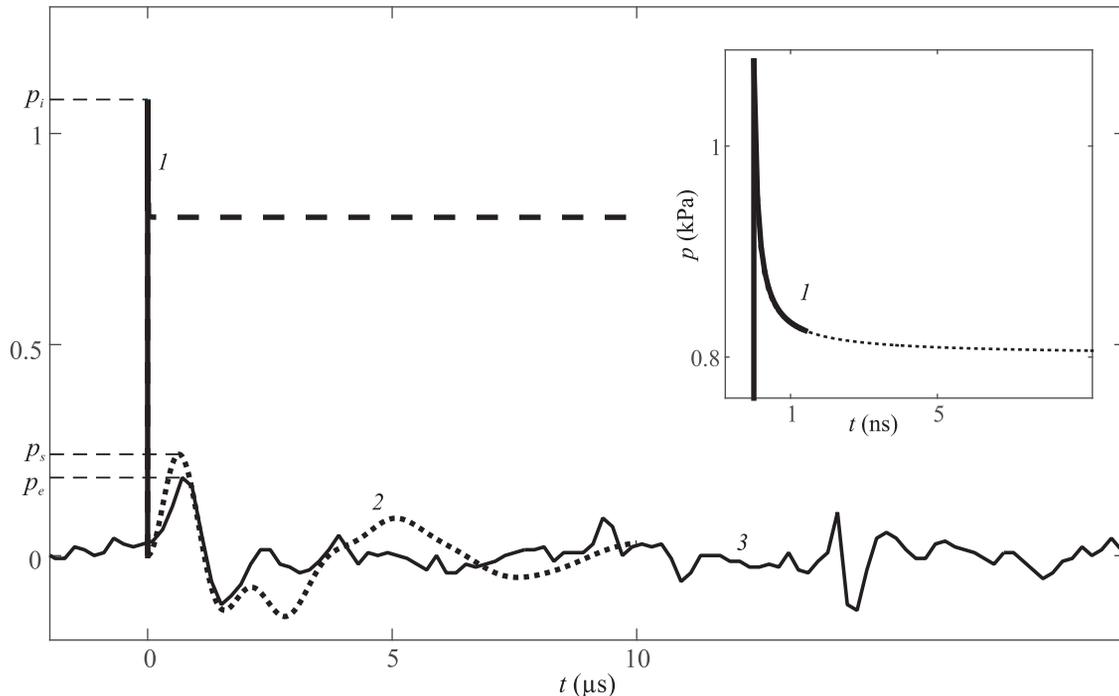


Рис. 3. Ударное давление: 1 – по формуле (5); 2 и 3 – на выходе синтезированного и реального гидрофонов. Вставка: развернутый начальный участок кривой 1. $U = 3.9 \text{ м/с}$, $h = 1.5 \text{ см}$

сток $y(r)$ выделялся таким образом, чтобы точка (рис. 2с, d) контакта r_0 находилась внутри него. Участок аппроксимировался аналитической функцией (полиномом 5-й степени, рис. 2d), после чего моделировалось его движение вниз со скоростью U на временном интервале 0.1–10 нс с шагом 0.1 нс. Таким образом было получено 100 значений радиуса r контактного контура, его временной производной $\dot{r} = U_e$ и показателя формы $\text{ctg } \alpha$.

По скорости приведения U (вычислялась по последним пяти видеокадрам) и начальным значениям r , $\text{ctg } \alpha$ определялась амплитуда ударного импульса (5). Расчетное значение сравнивалось с измеренным давлением.

Капля воды отрывалась под собственным весом от сопла диаметром 4 мм и падала на водную поверхность.

Видеосъемка производилась камерой “Optronis CR3000x2” на скорости 10000 к/с пространственным разрешением 0.04 мм.

Ударный импульс измерялся гидрофоном ГИ800 [26] с цилиндрическим пьезоэлементом диаметром 0.5 см. Глубина установки гидрофона – $h = 1.5 \text{ см}$.

Специальный интерфейс обеспечивал синхронизацию видеосъемки и акустических измерений, а также дискретизацию выхода гидрофона с шагом 0.2 мкс.

Ширина полосы гидрофона 0.1–1 МГц, неравномерность 6 дБ, чувствительность на верхнем пределе полосы около 0.04 Па/мкВ. Так как спектр фронта ударного импульса лежит существенно выше полосы гидрофона, выходной сигнал корректировался с помощью математической модели гидрофона, которая была синтезирована по его реальным характеристикам в виде фильтра Чебышева I рода 2-го порядка. В качестве входного сигнала модели служил импульс давления (5), рассчитанный на временном интервале $[0, t_c]$ по данным U , r и $\text{ctg } \alpha$ в конкретном опыте.

Рассчитанный импульс (рис. 3, сплошная кривая 1 на основном поле графика и вставке) продолжался аналитически аппроксимирующей функцией (штриховая) далеко за пределы сверхзвуковой стадии. Тем самым имитировался длительный спад ударного импульса в первые несколько микросекунд, что позволяло получить отклик (кривая 2) синтезированного гидрофона, пригодный для сопоставления с выходом (кривая 3) реального гидрофона. По амплитудам расчетного ударного импульса p_i , откликов синтезированного и реального гидрофонов (p_s и p_e) вычислялась величина $p_m = p_i \cdot p_e / p_s$, которой присваивалось значение амплитуды ударного импульса на входе реального гидрофона.

Из всего экспериментального материала отбирались опыты, в которых дистанция z между дном кап-

ли и его отражением на последнем видеокадре соответствовала условию $z_{\min} < z < z_{\max}$, где $z_{\max} = 0.4$ мм (считалось, что при $z > 0.4$ мм форма донного сегмента недостаточно близка к конечной на момент столкновения), z_{\min} – минимально различимый зазор между каплей и отражением – принимался равным удвоенному разрешению видеокамеры 0.08 мм. При $U \approx 4$ м/с расхождение в фиксации момента столкновения составляло $z/2U = 10\text{--}50$ мкс.

Всего отобрано 47 опытов, из которых 22 – при двух фиксированных значениях высоты отрыва $H = 112$ и 122 см (по 11 на каждой), и 25 опытов при изменяющейся высоте $H = 96\text{--}144$ см с шагом 2 см.

В случае, когда форма капли далека от правильной (рис. 4, вставка 1), профиль $y(r)$ заметно асим-

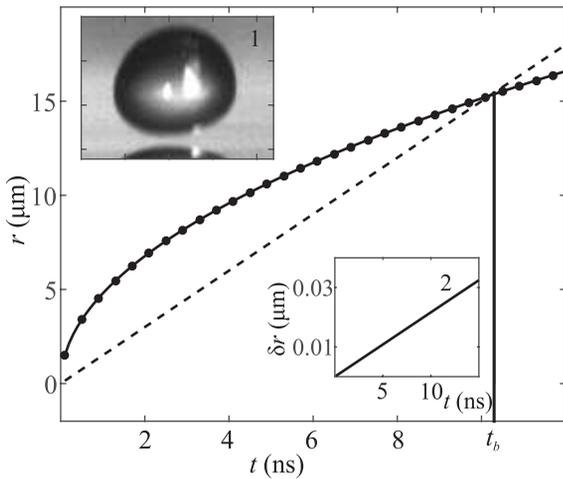


Рис. 4. Горизонтальные размеры контура слева r_1 (—) и справа r_2 (●) от точки контакта, вид приводняющейся капли (вставка 1) и разность $\delta r = r_1 - r_2$ (вставка 2). Штриховая линия – зависимость $r = ct$. Деление на фото – 2 мм. $U = 4.2$ м/с, $H = 102$ см

метричен, и при его перемещении со скоростью U точки его пересечения с поверхностью воды будут располагаться несимметрично относительно точки контакта r_0 . Однако в наносекундном временном интервале эта разница весьма незначительна: на рис. 4 размеры контура слева и справа от точки контакта – соответственно, r_1 и r_2 – неразличимы в масштабе графика. Разность $\delta r = |r_2 - r_1|$ составляет около 0.1% от текущего среднего значения $r_m = (r_1 + r_2)/2$ и линейно растет со временем (рис. 4, вставка 2), достигая всего лишь 0.01 мкм за 5 нс.

Следовательно, на интервале сверхзвукового расширения контактный контур с высокой точностью можно считать окружностью с радиусом $r = r_m$, а лежащий под ней участок донного сегмента – поверхностью вращения.

В отмеченный на рис. 4 момент t_b (пересечение кривой $r(t)$ с прямой $r = ct$) первичная ударная волна, возникшая при начальном контакте ($t = 0$), достигает расширяющуюся границу капли. С этого момента прекращается свободное распространение ударной волны и нарушается целостность границы поверхностного сегмента капли.

У каплю с визуально правильной формой (рис. 5а, б) отличия в размерах правого и левого

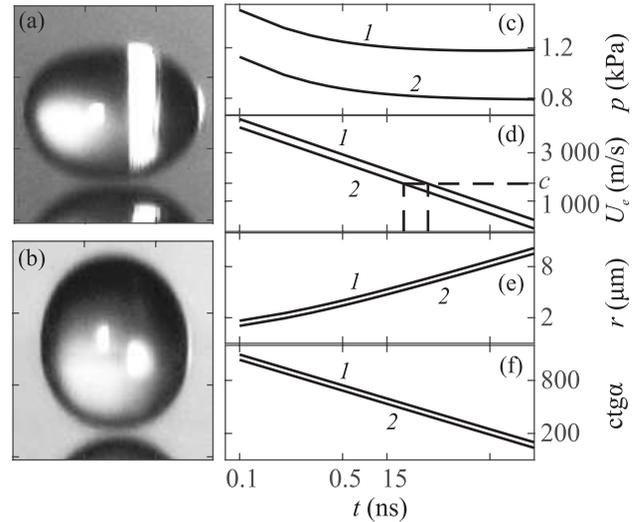


Рис. 5. Сплюснутая ((а), $U = 4.1$ м/с) и вытянутая ((б), $U = 3.9$ м/с) капли непосредственно перед приводнением. $H = 122$ см. 1 и 2 – соответствующие временные зависимости ударного давления (с), скорости расширения (д) и радиуса (е) контактного контура, и $\text{ctg } \alpha$ (ф). Масштаб – двойной логарифмический. Штриховые вертикали – время завершения сверхзвуковой стадии $t_c = 2$ (1) и 1.5 (2) нс. Деление на фото 2 мм

радиусов имеют порядок 10^{-5} мкм, что в сравнении с абсолютным размером пренебрежимо мало. На рисунке 5 у обеих капель конечные скорости U близки, однако звуковое давление, исходящее от сплюснутой капли, примерно в 1.5 раза выше (рис. 5с). Превышение обеспечено за счет высоких значений радиуса (рис. 5д) и скорости U_e (рис. 5е) контактного контура, развиваемой благодаря более пологому углу касания α (рис. 5ф). На рисунке 5д отмечены моменты t_c окончания сверхзвуковых стадий согласно условию $U_e = c$. Начиная с t_c , излучение звука прекращается, горизонтальное расстояние между первичным фронтом ударной волны и границей капли начинает сокращаться, исчезая при $t = t_b$ (рис. 4).

Во время сверхзвуковой стадии текущий линейный размер r и угол α меняются в соответствии

с формой поверхностного сегмента, которую капля принимает случайным образом от опыта к опыту. Начальные значения r и $\text{ctg} \alpha$ вместе со скоростью столкновения U определяют расчетную (согласно (5)) амплитуду p_i ударного импульса – начальные максимумы кривой $p(t)$ (рис. 3, кривая 1, рис. 5с). Последовательности форм, реализуемых в серии опытов, соответствует последовательность параметра $\chi = U^2 r \text{ctg} \alpha$. Отметим, что значения переменных r и α относятся к поверхностному сегменту и не зависят от возможной деформации подводного сегмента. Если в каждом опыте форма поверхностного сегмента, зафиксированная на момент столкновения, остается неизменной в течение сверхзвуковой стадии, то экспериментальная зависимость амплитуды ударного давления от χ в серии опытов должна быть линейной.

На рисунке 6 приведены амплитуды ударного давления, измеренные в повторяющихся опытах при падении капли с двух различных высот. Прямая 1 получена подстановкой в (5) измеренной скорости приведения U и начальных значений r и $\text{ctg} \alpha = (dy/dr)^{-1}$, рассчитанных по профилю формы Y .

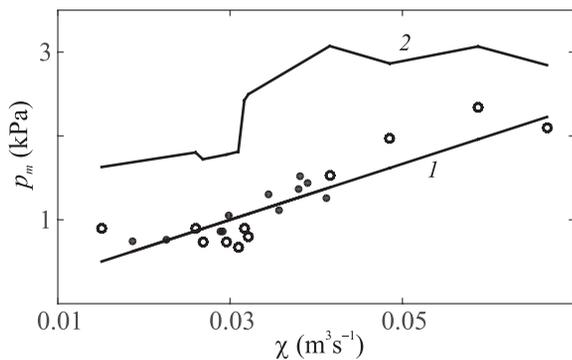


Рис. 6. Амплитуда p_m ударного давления в повторяющихся опытах при фиксированной высоте отрыва капли в зависимости от $\chi = U^2 r \text{ctg} \alpha$. Эксперимент: $H = 112$ (точки) и 122 (кружки) см. 1 – теория (5), 2 – расчет по интегральным параметрам капли-сфероида [10]

Обе серии экспериментальных точек группируются вблизи теоретической зависимости (5), которая является линейной функцией аргумента $\chi = U^2 r \text{ctg} \alpha$.

Отклонение измеренного давления от прямой 1 вызвано, предположительно, неточным соответствием зависимости (5) реальным значениям давления. Причина – неопределенность момента контакта, из-за чего фиксируемая форма капли не вполне совпадает с действительной формой на момент приведения. Среднее значение отклонения эксперимен-

тальных данных p_m от прямой (5) составляет $\mu = \langle |p_m - p|/p_m \rangle = 0.18$.

Кривая 2 на рис. 6 – амплитуда P_s ударного давления, рассчитанная согласно [10] по формуле $P_s = \rho U^2 a^2 b / (2h)$ для капли в форме правильного сфероида, где a и b – горизонтальная и вертикальная полуоси капли, в качестве которых взяты высота и поперечный размер, взятые из конечного видеокadra. Кривая 2 лежит значительно выше прямой 1 и реально измеренных данных, и это не только масштабное отличие – видно, что в поведении экспериментальных данных и кривой 2 мало подобия.

При постоянной высоте отрыва нестабильность скорости приведения обусловлена изменяющейся в процессе падения формой капли. В опытах с изменяющейся высотой отрыва скорость дополнительно меняется за счет гравитационной компоненты: на рис. 7а конечная скорость растет с высотой (кривая 1, рис. 7а), совершая колебания большой (до 25 % текущего значения) амплитуды, оставаясь ниже гравитационной кривой $\sqrt{2gH}$.

Однако даже в этом случае экспериментальные данные ударного давления укладываются вдоль зависимости $p(\chi)$ (рис. 7б, прямая 1) при средней величине отклонения $\mu = 0.15$. Нарастание амплитуды давления не коррелировано с ростом высоты отрыва H – как высокие, так и низкие давления распределены во всем диапазоне высот. Расчет по интегральным параметрам капли-сфероида [10] дает, как и в предыдущем опыте (рис. 6), кривую 2 (рис. 7б), резко отличающуюся по амплитуде и форме от экспериментальной кривой.

В работе предложена и проверена экспериментально теоретическая формулировка ударного акустического излучения при столкновении капли произвольной формы с поверхностью воды. Амплитуда излучения – функция скорости и параметров формы капли, которые она приобретает к моменту столкновения. В контексте сказанного, замена капли на твердое тело, форма которого идентична форме капли, не приведет к изменению ударного излучения. В связи с этим теоретические представления ударного импульса, в основе которых лежит аналогия с твердым телом правильной формы формально не противоречивы, однако непригодны для расчетов.

Эксперименты выполнены на Гидрофизическом комплексе для моделирования гидродинамических процессов в окружающей среде и их воздействия на подводные технические объекты, а также распространения примесей в океане и атмосфере (“ГФК ИПМех РАН”) [27].

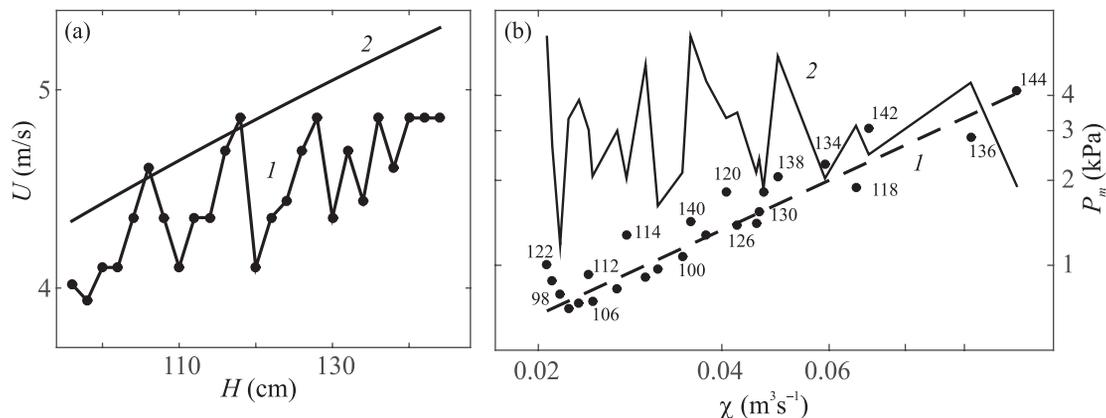


Рис. 7. (а) – Скорость приведения капли в диапазоне высоты отрыва $H = 96\text{--}144$ см, 1 – измерение по видеокдрам, 2 – $U = \sqrt{2gH}$. (б) – Амплитуда ударного импульса в зависимости от $\chi = U^2 r \text{ctg } \alpha$ (масштаб – двойной логарифмический). Точки – эксперимент (числа указывают выборочно высоту H отрыва капли), 1 – теория (5), 2 – расчет P_s по интегральным параметрам капли-сфероида [10]

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского научного фонда (проект 19-19-00598 “Гидродинамика и энергетика капли и капельных струй: формирование, движение, распад, взаимодействие с контактной поверхностью”).

1. J. Scrimger, *Nature* **318**, 647 (1985).
2. L. Bjorno, *J. De Physique IV. Colloque C5, Supplement de J. De Physique 3* **4**, C5-1023 (1994).
3. M. Ashokan, G. Latha, and R. Ramesh, *Applied Acoustics* **88**, 114 (2015).
4. T. Heindsmann, R. Smith, and Arneson, *J. Acoust. Soc. Am.* **27**, 378 (1955).
5. J. A. Nystuen, S. E. Moore, and P. J. Stabeno, *J. Acoust. Soc. Am.* **128**(1), 58 (2010).
6. С. Г. Цыганков, Г. В. Теверовский, *Национальная оборона* **6**, 64 (2011).
7. E. R. Gerstein, *American Scientist* **90**, 154 (2002).
8. G. J. Franz, *J. Acoust. Soc. Am.* **31**(8), 1080 (1959).
9. Y. P. Guo and J. E. Ffowcs Williams, *J. Fluid Mech.* **227**, 345 (1991).
10. M. S. Howe and N. A. Hagen, *J. Sound Vib.* **330**, 625 (2011).
11. В. Е. Прохоров, *ЖЭТФ* **153**(4), 584 (2018).
12. A. Prosperetti and H. N. Oguz, *Annu. Rev. Fluid Mech.* **25**, 577 (1993).
13. S. Phillips, A. Agarwal, and P. Jordan, *Sci. Rep.* **8**, 9515 (2018).
14. В. Е. Прохоров, Ю. Д. Чашечкин, *ДАН* **443**(6), 686 (2012).
15. G. Gillot, C. Derac, J.-M. G enevaux, and L. Benyahia, *Phys. Fluids* **32**, 062004 (2020).
16. M. Lee, R. G. Longoria, and D. E. Wilson, *J. of Fluid and Structures* **11**, 819 (1997).
17. J. E. Field, *Phys. Med. Biol.* **36** (1), 1475 (1991).
18. В. Е. Прохоров, Ю. Д. Чашечкин, *Изв. РАН. Механика жидкости и газа* **4**, 109 (2014).
19. T. Tran, H. de Maleprade, C. Sun, and D. Lohse, *J. Fluid Mech.* **726**, R3-1 (2013).
20. M. H. W. Hendrix, W. Bouwhuis, D. van der Meer, D. Lohse, and J. H. Snoeijer, *J. Fluid Mech.* **789**, 708 (2016).
21. Ю. Д. Чашечкин, В. Е. Прохоров, *ЖЭТФ* **149**(4), 864 (2016).
22. C. W. Visser, P. E. Frommhold, S. Wildeman, R. Mettin, D. Lohse, and C. Sun, *Soft Matter* **11**, 1708 (2015).
23. P. Morse, *Vibration and Sound*, McGraw-Hill Book Company Inc., N.Y. (1948).
24. R. C. Gonzalez, R. E. Woods, and S. L. Eddins, *Digital Image Processing Using MATLAB*, Pearson Prentice Hall, New Jersey (2004).
25. P. Soille, *Morphological Image Analysis: Principles and Applications*, Springer-Verlag, Berlin (1999).
26. Гидрофон ГИ800, <https://all-pribors.ru/docs/48796-11.pdf>.
27. Гидрофизический комплекс для моделирования гидродинамических процессов в окружающей среде и их воздействия на подводные технические объекты, а также распространения примесей в океане и атмосфере (“ГФК ИПМех РАН”). <http://www.ipmnet.ru/uniquequip/gfk/>.

Динамика и излучение релятивистских магнитных диполей лазерной кластерной плазмы

А. А. Андреев^{†*}, К. Ю. Платонов^{×1)}

[†] Санкт-Петербургский государственный университет, 199034 С.-Петербург, Россия

^{*} Физико-технический институт им. А. Ф. Иоффе РАН, 194021 С.-Петербург, Россия

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

Поступила в редакцию 4 сентября 2020 г.

После переработки 3 октября 2020 г.

Принята к публикации 5 октября 2020 г.

Показано, что облучению коротким (десятки фс), релятивистски-интенсивным, циркулярно-поляризованным лазерным импульсом газовой мишени с нанокластерами возникают магнитные диполи, ориентированные по направлению лазерного импульса и создающие квазистационарное регулярное магнитное поле амплитудой до десятых долей поля исходного лазерного импульса. При достаточной концентрации кластеров после выключения лазерного импульса происходят колебания магнитных моментов диполей и осцилляции магнитного поля, сопровождающиеся коротким (несколько периодов) вторичным излучением терагерцового диапазона. Условием появления такого короткого терагерцового импульса является превышение циклотронной частоты электрона в среднем по объему магнитном поле над обратным временем жизни кластера.

DOI: 10.31857/S1234567820210041

Введение. Известно, что в прозрачных для лазерного излучения мишенях циркулярно поляризованным лазерным импульсом через обратный эффект Фарадея генерируются сильные магнитные поля [1–3]. Специальное винтовое пространственное распределение интенсивности лазерного импульса позволяет получить в аналогичном случае продольное магнитное поле амплитудой выше гига-Гаусса [4]. Однако такими методами возможно создание короткоживущего магнитного поля. В отличие от однородной плазмы низкой плотности в предлагаемом методе создается множество плотных плазм кластеров в фокальном объеме лазерного импульса. Во время действия лазерного импульса генерируемые магнитные диполи кластеров ориентированы параллельно и магнитное поле в фокальном объеме однородно. Таким образом, создается среда из магнитных диполей, магнитное поле в которой занимает весь фокальный объем между кластерами и приводит к их взаимному вращению после окончания лазерного импульса. Характерные частоты вращения диполей соответствуют терагерцовому диапазону. Несмотря на взаимное вращение диполей, из-за анизотропии фокального объема средняя намагниченность вдоль оси лазерного импульса продолжает оставаться доста-

точно высокой и после окончания лазерного импульса, вплоть до времени гидродинамического разлета кластеров. Соответственно удается получить долго живущее крупномасштабное магнитное поле амплитудой до ГГц.

Образование и взаимодействие кластерных магнитных диполей. Рассмотрим взаимодействие кластера радиуса $R \ll \lambda$ с циркулярно-поляризованным лазерным импульсом с длиной волны λ , частотой ω , релятивистской интенсивностью $I = cE_L^2/4\pi \geq 10^{18}$ Вт/см² (E_L – напряженность лазерного поля) и длительностью $\tau_L \leq 100$ фс. Будем считать, что в результате взаимодействия кластер оказался частично ионизован и электроны в виде оболочки (суммарным зарядом $-Q$ и характерным радиусом $p \sim \lambda$) [5] окружают ионное ядро радиуса R (с зарядом Q) и вращаются под действием циркулярно-поляризованного лазерного импульса. При поглощении лазерного импульса электронами кластера им передается энергия $E_{abs} = \eta I \pi r^2 \tau_L$ и момент импульса $J_{abs} = E_{abs}/\omega$. Коэффициент поглощения η линейно-поляризованного излучения (циркулярную поляризацию можно получить суперпозицией двух линейных поляризаций) нанокластером рассматривался в работе [6] и составляет десятки процентов. На один электрон приходится поглощенный момент:

¹⁾e-mail: konstantin_platonov@yahoo.com

$$M = \frac{J_{abs}}{N_e} \approx \frac{J_{abs}}{n_e \pi p^2 c \tau_L} = \frac{\eta I}{n_e c \omega}, \quad (1)$$

где n_e – концентрация электронов в оболочке кластера [7]. Для сравнения, если электрон рассматривать как свободный в поле циркулярно поляризованной волны, то момент импульса: $M_E = r_E p_E = \frac{1}{\omega} m_e v_E^2 = \frac{I}{\omega c n_{cr}} (n_{cr} = m_e \omega^2 / 4\pi e^2)$. Очевидно, что $M \ll M_E$, поэтому оценка (1) справедлива при условии $n_e > \eta n_{cr}$. Лазерное поле в (1) также не должно превышать поле, соответствующее полному удалению электронов из кластера (“Кулоновскому взрыву”): $v_E/c \ll 2Zn_e e^2 R\lambda / 3m_e c^2$. Магнитный момент отдельного релятивистского электрона связан с его механическим моментом гиромангнитным отношением $\mu_1 = eM/2\gamma_L m_e c$, где $\gamma_L = \sqrt{1 + v_E^2/c^2}$ – Лоренц-фактор электрона. Магнитный момент единицы объема кластера получается не зависящим от концентрации электронов (при $n_e > \eta n_{cr}$):

$$M = n_e M = \frac{e\eta I}{2\gamma_L m_e c^2 \omega}. \quad (2)$$

Магнитный момент всего кластера характерным радиусом p составит $\mu_\Sigma \approx 4\pi p^3 M/3$. Максимальное значение квазистационарного магнитного поля (на “поверхности” кластера) оценивается как поле однородно намагниченного шара:

$$H_{z \max} \approx \frac{8\pi}{3} M. \quad (3)$$

Отношение максимального магнитного поля к лазерному оценивается как

$$\frac{H_{z \max}}{E_L} = \frac{\sqrt{4\pi e\eta} \sqrt{I}}{3\gamma_L m_e c^3/2\omega} = \frac{\eta a}{3\sqrt{1+a^2}}, \quad a = \frac{eE_L}{m_e \omega c} \quad (4)$$

и при $a \gg 1$ составляет $\eta/3$ (десятичные доли) лазерного поля. Оценка (4) соответствует результатам численного PIC-моделирования взаимодействия кластера с циркулярно-поляризованным лазерным импульсом. В работе [7] Хе кластер радиусом 50 нм и ионной плотностью 10^{22} см⁻³ облучался циркулярно-поляризованным 10 фс импульсом. При лазерной интенсивности 10^{20} Вт/см² величина квазистационарного магнитного поля составила 35 кТ (килоТесла), что соответствует оценке (4).

Поскольку поле магнитного диполя спадает в пространстве как r^{-3} , среднее магнитное поле в фокальном объеме будет зависеть от концентрации n_{cl} кластеров в фокальной области и составит

$$\langle H_z \rangle \approx H_{z \max} n_{cl} p^3, \quad n_{cl} p^3 < 1. \quad (5)$$

Поле (3) существует в течение характерного времени разлета ионов кластера $\tau_{cl} \approx p/\sqrt{Zm_e c v_E / Am_p}$

(атомное число иона A , масса Am_p , заряд Z). Поле (5) будет приводить к взаимодействию (повороту) диполей, что в свою очередь приведет к изменению самого среднего поля (5). При характерном расстоянии между диполями $n_{cl}^{-1/3}$ момент сил между парой соседних диполей составит $K \approx \mu_\Sigma^2 n_{cl} = \langle H_z \rangle H_{z \max} p^3 / 4$. Время Δt разворота диполя определяется отношением момента импульса кластера к воздействию моменту сил $\Delta t \approx 4\pi n_e p^3 M / 3K = 2m_e c / e \langle H_z \rangle$ и совпадает с обратной Ларморовской частотой электрона в среднем магнитном поле. Отметим, что поворот магнитного диполя означает поворот его электронной оболочки, а ионный остов при этом не поворачивается, и в оценке Δt отсутствует масса иона. Если $\Delta t \gg \tau_{cl}$, то поворотом диполей можно пренебречь, однако в этом случае $\langle H_z \rangle \ll H_{z \max}$ ($\langle H_z \rangle \sim n_{cl} \sim \Delta t^{-1}$), и достижение больших средних значений магнитного поля невозможно. В обратном предельном случае $\Delta t < \tau_{cl}$ возможно $\langle H_z \rangle \rightarrow H_{z \max}$ при $n_{cl} \rightarrow p^{-3}$. Например, в случае тяжелых кластеров из жидкого Хе величина $\tau_{cl} \sim 1$ пс и при $n_{cl} \sim 10^{11}$ см⁻³ время разворота диполя $\Delta t \sim 0.1\tau_{cl}$. Условие $\Delta t < \tau_{cl}$ при подстановке Δt и τ_{cl} можно переписать в виде ограничения на концентрацию кластеров и интенсивность лазерного поля $n_{cl} \gg p^{-3} \left(\frac{3\lambda}{\pi p}\right) \sqrt{\frac{Zm_e}{Am_p}} \frac{1}{\eta} a^{-3/2}$, $a \gg 1$ и добавить к нему условие $n_{cl} \ll p^{-3}$, соответствующее отсутствию касания друг другом электронных оболочек кластеров. Поскольку $p \approx \lambda$, оба неравенства выполняются, если $a \gg \left(\frac{Zm_e}{Am_p}\right)^{1/3} \frac{1}{\eta^{2/3}} \sim \frac{0.1}{\eta^{2/3}}$, что легко реализуемо в эксперименте. Фокальный объем при заданном радиусе r_L лазерного пучка составляет $V_L \approx \pi r_L^2 * 2\pi r_L^4 / \lambda = 2\pi^2 r_L^4 / \lambda$. Общее количество кластеров при этом составит $N_{cl} = n_{cl} 2\pi^2 r_L^4 / \lambda$. При максимально возможной концентрации кластеров $n_{cl}^{-1/3} = 2p \approx 2\lambda$ число кластеров в фокальном объеме составит $N_{cl} = (\pi r_L^2 / 2\lambda^2)^2$, и при $r_L = 5\lambda$ $N_{cl} \approx 1500$. Таким образом, в реальной ситуации возможен режим магнитного взаимодействия нанокластеров в фокальном объеме, и необходимо рассмотрение динамики этого взаимодействия. Отметим, что даже при сверхзвуковой скорости струи кластеров газовой мишени $v_{cl} \approx 5$ км/с кластер за время своей жизни пройдет расстояние $v_{cl} \tau_{cl} \approx 10^{-7}$ см ($p \sim \lambda \sim 10^{-4}$ см). Соответственно влиянием движения кластеров можно пренебречь и рассматривать мгновенные положения диполей в течении времени τ_{cl} .

Динамика магнитных моментов кластерной лазерной плазмы после окончания лазерного импульса. Введем единичный вектор $\bar{n}_i(t)$ направления магнитного момента i -го кластера (маг-

нитный момент кластера $\bar{\mu}_i(t) = \bar{n}_i(t)\mu_\Sigma$. Магнитное поле системы кластеров является суммой полей отдельных диполей, соответственно потенциальная энергия их взаимодействия и уравнение движения отдельного диполя принимают вид

$$\begin{aligned}
 U &= - \sum_{k=1}^{N_{cl}} \bar{\mu}_k \bar{H}(\bar{r}_k) = H_z^2 \max \frac{p^6}{4} \times \\
 &\times \sum_{i,k=1, i < k}^{N_{cl}} \frac{(\bar{n}_i \bar{n}_k - 3(\bar{e}_{ki} \bar{n}_k)(\bar{e}_{ki} \bar{n}_i))}{R_{ki}^3} \frac{d\bar{n}_i(t)}{dt} = \\
 &= \frac{eH_z \max p^3}{4m_e c} \sum_{i,k=1, k \neq i}^{N_{cl}} \left(-\frac{\bar{n}_i \times \bar{n}_k}{R_{ki}^3} + \frac{3\bar{n}_i \times \bar{e}_{ik}(\bar{n}_k \bar{e}_{ik})}{R_{ik}^3} \right), \\
 \bar{n}_i(0) &\equiv \bar{e}_z, \quad \bar{e}_{ki} = (\bar{r}_k - \bar{r}_i) / |\bar{r}_k - \bar{r}_i| = \bar{R}_{ki} / R_{ki}. \quad (6)
 \end{aligned}$$

При случайной ориентации единичных векторов \bar{e}_{ki} , соединяющих пары диполей в системе (6), реализуется хаотическое динамическое состояние с нулевым суммарным моментом в предельном равновесном состоянии с температурой кластеров T_{cl} : $\int (\sum_{i=1} \bar{n}_i) \exp(-U/T_{cl}) d\Omega_1 \dots d\Omega_{N_{cl}} = 0$. Однако в случае фокального объема присутствует анизотропия пространственного распределения кластеров, а сам вытянутый вдоль оси лазерного импульса объем больше соответствует расположению кластеров в виде цепочки с параллельной начальной ориентацией диполей (конфигурация цепочки: $\bar{e}_{ki} = \bar{e}_z$, $\bar{n}_i = \bar{e}_z$, $\forall k, i$ отвечает минимуму потенциальной энергии в (6)). Соответственно следует ожидать, что, несмотря на движение диполей в такой структуре, полной хаотизации направлений диполей не произойдет и сохранится значительная средняя намагниченность. Проанализируем случай небольшого количества диполей, обладающих анизотропным пространственным распределением. На рисунке 1 показано расположение 2-х и 4-х диполей относительно направления \bar{k} падающего лазерного импульса (вектор \bar{k} лежит в плоскости диполей и составляет угол θ с осью z , на которой расположена пара диполей 1 и 2). В случае 4-х диполей они образуют ромб с острым углом 60° . В системе (6) для 2-х диполей при их параллельной начальной ориентации сохраняются во времени $n_{1z}(t) = n_{2z}(t) = \cos \theta$ и (6) сводится к аналитически решаемой системе линейных уравнений. Решение показывает, что диполи (1, 2) начинают синхронно вращаться вокруг соединяющей их оси z , как показано на рис. 1. При малых углах θ по отношению к оси анизотропии системы (отрезок 1–2) магнитный момент 2-х диполей практически равен начальному. Движение 4-х диполей, расположенных в углах ромба с острым углом 60° , обладает симмет-

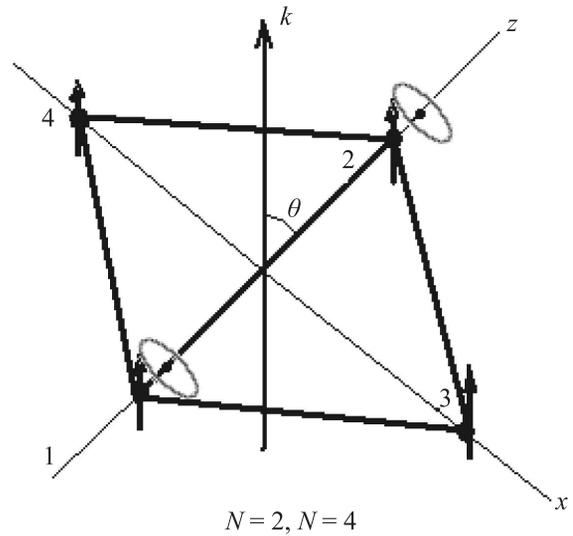


Рис. 1. Пространственное расположение 2-х (1, 2) и 4-х (1, 2, 3, 4) диполей

рией – при любом угле падения движение пар диполей 1–2 и 3–4 одинаково. На рисунке 2 показано временное поведение суммарного момента 4-х диполей в зависимости от угла падения θ лазерного импульса. Углы падения вдоль диагоналей ромба $\theta = 0, \pi/2$ оставляют диполи неподвижными, однако устойчивость этих равновесных состояний различна. Состояние с $\theta = \pi/2$, когда импульс падает вдоль оси анизотропии (вытянутости) ромба устойчивое. На рисунке 2 видно, что в интервале углов падения $[60^\circ; 90^\circ]$ сохраняется среднее значение проекции магнитного момента на уровне начального (равного 4-м на рис. 2). Другое равновесное значение ($\theta = 0$), наоборот, неустойчиво. Отклонение от него на 1° приводит, как видно на рис. 2, к осцилляциям суммарного момента относительно нулевого значения. Различие устойчивости равновесных ($\theta = 0, \pi/2$) состояний связано с тем, что расстояние 1–2 меньше расстояния 3–4. Конфигурация $\theta = \pi/2$ ближе к состоянию линейной цепочки кластеров ($R_{12} \rightarrow 0$), отвечающему минимуму потенциальной энергии в (6). Рассмотрение большего количества кластеров (8 шт., прямоугольник 4×2) демонстрирует поведение суммарного момента, аналогичное рис. 2: ориентация диполей вдоль длинной стороны обладает устойчивостью и высоким средним моментом. Подчеркнем, что “степень анизотропии” (отношение продольного и поперечного размеров) фокального объема составляет $2\pi r_L^2 / 2\lambda r_L = \pi r_L / \lambda \gg \sqrt{3}$ (отношение диагоналей ромба на рис. 1), поэтому и в случае $N_{cl} \gg 1$ следует

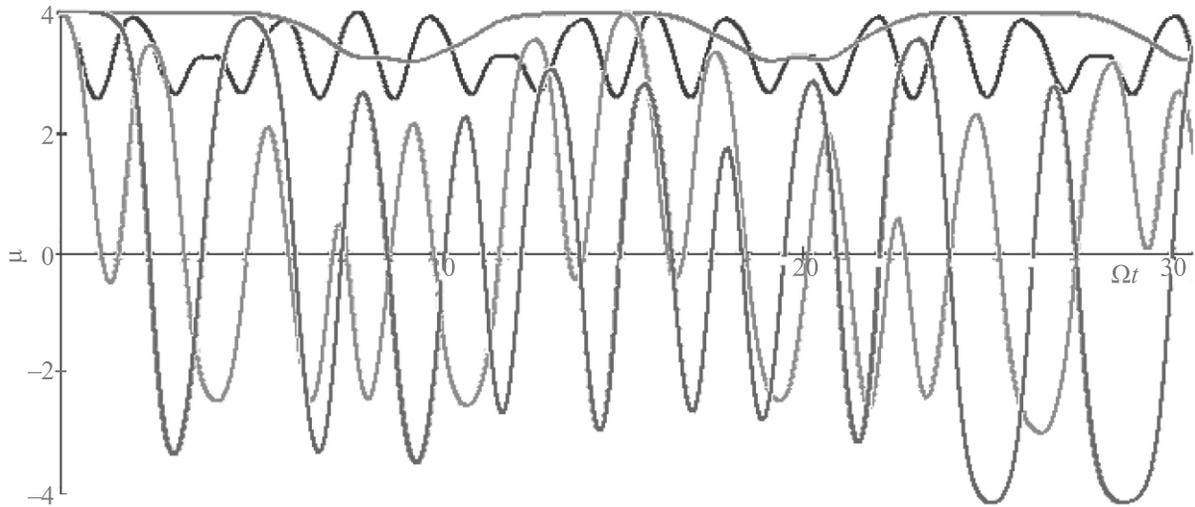


Рис. 2. (Цветной онлайн) Проекция суммарного момента 4-х диполей на направление лазерного импульса ($\mu = (\sum_{i=1}^4 n_{i z}) \cos \theta - (\sum_{i=1}^4 n_{i x}) \sin \theta$) при различных углах падения θ лазерного импульса как функция безразмерного времени Ωt , $\Omega = e H_z \max p^3 / 4 m_e c R_{12}^3$. Красная кривая – $\theta = 89^\circ$, черная – $\theta = 60^\circ$, зеленая – $\theta = 30^\circ$, синяя – $\theta = 1^\circ$. Магнитный момент одного диполя соответствует единице на оси ординат

ожидать поведения суммарного момента фокального объема, аналогичного красной и черной кривой рис. 2. В реальной ситуации возможны диссипативные силы взаимодействия между диполями, нахождение вида которых в уравнениях (6) требует отдельного исследования. При наличии диссипативных сил (если время диссипации меньше τ_{cl}) система диполей должна попасть в состояние с минимальной энергией U в (6), отвечающее обращению в нуль моментов сил в правых частях уравнений движения (6). Для ромба на рис. 1 это ориентация моментов вдоль большой диагонали. Отметим, что система уравнений (6) движения намагниченных микрочастиц в самосоглазованном поле является предметом исследования современной физики твердого тела. В работах [8–10] приведены расчеты динамики и равновесных конфигураций упорядоченных (в отличие от нашего случая) решеток магнитных моментов с ячейкой в виде квадрата или правильного n -угольника после выключения внешнего поля, ориентирующего все моменты в одном направлении. Из-за отсутствия анизотропии в равновесном состоянии устанавливается нулевая средняя намагниченность.

Несмотря на случайное пространственное положение диполей в фокальном объеме, характерное расстояние между соседними диполями $R_{i i+1} \approx n_{cl}^{-1/3}$ определено достаточно точно. Соответственно характерная частота колебаний дипольных моментов в системе (6) и суммарного

дипольного момента на рис. 2 также определена: $\Omega \approx e H_z \max p^3 n_{cl} / 4 m_e c$. Колебания магнитных моментов в кластерной плазме будут порождать вторичное излучение с интенсивностью $I_\Omega \sim N_{cl} \Omega^4 \mu_\Sigma^2 / 3 c^3$. Это излучение когерентно по числу электронов в отдельном кластере (пропорционально квадрату числа), а его характерная частота управляется концентрацией кластеров. Для лазерной интенсивности 10^{19} Вт/см² и 100 нм полностью ионизованных ($Z = 10$) Xe кластеров с концентрацией $n_{cl} \sim 10^{11}$ см⁻³ Ω попадает в терагерцовый диапазон ($\Omega \approx 7$ ТГц, длина волны $\lambda_\Omega \approx 40$ мкм). Отметим, что если длина фокальной перетяжки лазерного импульса $2\pi r_L^2 / \lambda < \lambda_\Omega$, терагерцовый импульс будет когерентен и по количеству кластеров, а его интенсивность пропорциональна квадрату амплитуды колебаний магнитного момента уже не отдельного кластера, а амплитуде колебаний магнитного момента $N_{cl} \mu_\Sigma$ всего фокального объема. При времени жизни кластера $\tau_{cl} \sim 1$ пс ($\tau_{cl}^{-1} \sim 1$ ТГц) лазерная кластерная плазма является источником короткого (десяток периодов) полностью (в случае $2\pi r_L^2 / \lambda < \lambda_\Omega$) или частично ($2\pi r_L^2 / \lambda > \lambda_\Omega$) когерентного терагерцового импульса. При этом интенсивность терагерцового излучения в приведенных выше оценках превышает на ~ 4 порядка (на частотах $\sim \Omega$) интенсивность фона тормозного излучения релятивистских электронов кластера $I^{(BG)} \approx N_{cl} \frac{16\pi r_L^3 \epsilon^6 Z^3 n_i^2 \gamma_L}{3m_e c^2 \hbar} \ln(2\gamma_L)$

и синхротронного излучения вращающейся электронной оболочки кластера. Кластерную лазерную плазму с указанными выше параметрами можно рассматривать как источник коротких когерентных терагерцовых импульсов.

Отметим, что эффект генерации терагерцового импульса лазерной кластерной плазмой известен в случае взаимодействия кластеров с линейно-поляризованным лазерным импульсом нерелятивистской ($\leq 5 \cdot 10^{17}$ Вт/см²) интенсивности [11]. Источником терагерцового излучения в этом случае являются колебания электрического квадрупольного момента внутренних электронов кластера во время действия лазерного импульса. В рассматриваемой работе при релятивистской лазерной интенсивности во время действия импульса электронами кластера генерируется рентгеновское излучение, а терагерцовое излучение возникает при колебаниях магнитных моментов кластеров уже после окончания воздействия лазерного импульса.

Выводы. В данной работе показано, что при облучении коротким (десятки фс), релятивистски-интенсивным, циркулярно-поляризованным лазерным импульсом газа нейтральных нанокластеров возникают релятивистские магнитные диполи, ориентированные по направлению лазерного импульса и создающие квазистационарное регулярное магнитное поле. При достаточной концентрации диполей после выключения лазерного импульса происходят колебания магнитных моментов диполей и магнитного поля, сопровождающиеся коротким (несколько периодов) вторичным излучением терагерцового диапазона. Среднее значение магнитного поля при этом остается значительным, сравнимым с тем, которое было во время воздействия лазерного импульса, и достигающим единиц процентов поля лазерного импульса. Режим колебаний магнитного поля и появление терагерцового импульса реализуется, когда обратная циклотронная частота электрона в среднем по объему магнитном поле меньше времени жизни магнитного диполя. Экспериментальная реализация кластерной лазерной мишени позволит в лабораторных условиях генерировать магнитные поля с амплитудой до ГГц и исследовать динамику диполь-дипольного взаимодействия несколь-

ких сотен элементарных диполей. Отметим, что для генерации магнитных диполей достаточно миллиджоульной энергии лазерного импульса и фемтосекундной длительности импульса, поэтому возможно “квазистационарное” намагничивание фокального объема газовой мишени с помощью повторения лазерных импульсов с частотой до нескольких кГц и непрерывной подачи кластеров в фокальный объем через микросопло. Созданные таким образом в лазерной плазме релятивистские магнитные диполи являются моделью пульсаров в астрофизике [12, 13], а взаимодействие диполей – моделью “дипольного стекла” в физике твердого тела.

1. Z. Najmudin, M. Tatarakis, A. Pukhov, E. L. Clark, R. J. Clarke, A. E. Dangor, J. Faure, V. Malka, D. Neely, M. I. K. Santala, and K. Krushelnick, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 215004 (2001).
2. N. Naseri, V. Y. Bychenkov, and W. Rozmus, *Phys. Plasmas* **17**, 083109 (2010).
3. M. Tatarakis, I. Watts, F. N. Beg, E. L. Clark, A. E. Dangor, A. Gopal, M. G. Haines, P. A. Norreys, U. Wagner, M.-S. Wei, M. Zepf, and K. Krushelnick, *Nature* **415**, 280 (2002).
4. Z. Lecz, I. V. Konoplev, A. Seryi, and A. Andreev, *Sci. Rep.* **6**, 36139 (2016).
5. T. Fennel, K.-H. Meiwes-Broer, J. Tiggesbäumker, P.-G. Reinhard, P. M. Dinh, and E. Suraud, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 1793 (2010).
6. I. Kostyukov and J.-M. Rax, *Phys. Rev. E* **67**, 066405 (2003).
7. Z. Lecz and A. Andreev, *Phys. Rev. Research* **2**, 023088 (2020).
8. А. М. Шутый, *ФТТ* **56**, 1233 (2014).
9. А. М. Шутый, *ЖЭТФ* **145** 1048 (2014).
10. А. М. Шутый, *ЖЭТФ* **137** 277 (2010).
11. A. V. Balakin, M. S. Dzhidzhoev, V. M. Gordienko, I. A. Zhvaniya, I. E. Ivanov, N. A. Kuzechkin, P. M. Solyankin, and A. P. Shkurinov, *Progress in Photon Science, Springer Series in Chemical Physics* **119**, 321 (2019).
12. B. A. Remington, R. P. Drake, and D. D. Ryutov, *Rev. Mod. Phys.* **78**, 755 (2006).
13. L. G. Huang, H. Takabe, and T. E. Cowan, *High Power Laser Science and Engineering* **7**, e22 (2019).

Разложение Гинзбурга–Ландау и верхнее критическое поле в неупорядоченной модели Хаббарда с притяжением (Миниобзор)

Н. А. Кулеева¹⁾, Э. З. Кучинский¹⁾, М. В. Садовский¹⁾

Институт электрофизики Уральского отделения РАН, 620016 Екатеринбург, Россия

Поступила в редакцию 24 сентября 2020 г.

После переработки 24 сентября 2020 г.

Принята к публикации 29 сентября 2020 г.

Дается краткий обзор исследований влияния разупорядочения на коэффициенты разложения Гинзбурга–Ландау в модели Андерсона–Хаббарда с притяжением в рамках обобщенного DMFT + Σ приближения. Рассмотрена широкая область изменения потенциала притяжения U – от предела слабой связи, где сверхпроводимость описывается моделью БКШ, к пределу очень сильной связи, где переход в сверхпроводящее состояние связан с конденсацией Бозе–Эйнштейна (БЭК) компактных куперовских пар, образующихся при температуре, существенно выше температуры перехода в сверхпроводящее состояние, а также широкий интервал разупорядочения – от слабого до сильного, когда система находится в окрестности перехода Андерсона. В этой же области изменения параметров модели детально исследовано температурное поведение орбитального и парамагнитного верхнего критического магнитного поля $H_{c2}(T)$, которое демонстрирует аномалии, связанные как с ростом потенциала притяжения, так и с эффектами сильного беспорядка.

DOI: 10.31857/S1234567820210053

1. Введение. Исследования влияния разупорядочения на сверхпроводимость имеют достаточно долгую историю. В классических работах Абрикосова и Горькова [1–4] рассматривался предел слабого беспорядка ($p_F l \gg 1$, где p_F – импульс Ферми и l – длина свободного пробега) и сверхпроводимости со слабой связью, хорошо описываемой теорией БКШ. Известная “теорема Андерсона” о критической температуре T_c сверхпроводников с “нормальным” (немагнитным) беспорядком [5, 6] также обычно относится к этому пределу. Обобщение теории “грязных” сверхпроводников на случай достаточно сильного беспорядка ($p_F l \sim 1$) (и далее, вплоть до области перехода Андерсона) было выполнено в работах [7–10], где сверхпроводимость также рассматривалась в пределе слабой связи.

Проблема обобщения теории БКШ в область очень сильной связи рассматривается тоже уже достаточно давно. Существенный прогресс в этом направлении был связан с работой Нозьера и Шмитт-Ринка [11], которые предложили эффективный метод для исследования кроссовера от поведения типа БКШ в области слабой связи к бозе-эйнштейновской конденсации (БЭК) в области сильной связи. В то

же время, проблема сверхпроводимости неупорядоченных систем в пределе сильной связи и в области БКШ–БЭК кроссовера исследована достаточно слабо.

Одной из наиболее простых моделей, в которых можно исследовать кроссовер БКШ–БЭК, является модель Хаббарда с притяжением. Наиболее успешным подходом к исследованию модели Хаббарда, как для описания сильно коррелированных систем в случае отталкивательного взаимодействия, так и для исследования кроссовера БКШ–БЭК в случае притяжения, является теория динамического среднего поля (DMFT) [12–14]. В последние годы нами развивался обобщенный DMFT + Σ подход к модели Хаббарда [15–21], который оказался очень удобным для исследования влияния различных внешних (по отношению к учитываемому в рамках DMFT) взаимодействий. В работе [22] мы использовали этот подход для анализа одночастичных свойств нормальной фазы и оптической проводимости в модели Хаббарда с притяжением. В дальнейшем DMFT + Σ метод был использован нами в [23, 24] для исследования влияния беспорядка на температуру сверхпроводящего перехода, вычисляющуюся в рамках подхода Нозьера и Шмитт-Ринка.

Начиная с классической работы Горькова [3], хорошо известно, что разложение Гинзбурга–Ландау

¹⁾e-mail: strigina@iep.uran.ru; kuchinsk@iep.uran.ru; sadovski@iep.uran.ru

играет фундаментальную роль в теории “грязных” сверхпроводников, позволяя эффективно исследовать поведение различных физических величин вблизи критической температуры в зависимости от степени беспорядка [6]. Обобщение этой теории в область сильного беспорядка (вплоть до андерсоновского перехода металл–диэлектрик) также основывалось на микроскопическом выводе коэффициентов этого разложения [7–10]. Однако соответствующее рассмотрение, как уже отмечено выше, всегда проводилось в пределе слабой связи теории БКШ.

В данной работе мы дадим краткий обзор результатов, полученных в наших работах [25–27], посвященных микроскопическому выводу коэффициентов разложения Гинзбурга–Ландау с учетом влияния разупорядочения в широкой области БКШ–БЭК кроссовера, включая область сильного беспорядка в окрестности перехода Андерсона. Будет также дан обзор тесно связанных с этим результатов работ [28, 29] по температурной зависимости орбитального и парамагнитного верхнего критического магнитного поля в области такого кроссовера при различных степенях разупорядочения.

2. Температура сверхпроводящего перехода. Рассмотрим неупорядоченную немагнитную модель Хаббарда с притяжением, гамильтониан которой имеет вид:

$$H = -t \sum_{\langle ij \rangle \sigma} a_{i\sigma}^\dagger a_{j\sigma} + \sum_{i\sigma} \epsilon_i n_{i\sigma} - U \sum_i n_{i\uparrow} n_{i\downarrow}, \quad (1)$$

где $t > 0$ – амплитуда перескока между ближайшими соседями, U – потенциал притяжения на узле, $n_{i\sigma} = a_{i\sigma}^\dagger a_{i\sigma}$ – оператор числа электронов на узле, $a_{i\sigma} (a_{i\sigma}^\dagger)$ – оператор уничтожения (рождения) электрона со спином σ , локальные энергии ϵ_i полагаются независимыми случайными величинами на разных узлах решетки. Мы предполагаем гауссовское распределение для энергетических уровней ϵ_i :

$$\mathcal{P}(\epsilon_i) = \frac{1}{\sqrt{2\pi W}} \exp\left(-\frac{\epsilon_i^2}{2W^2}\right). \quad (2)$$

Параметр W здесь служит мерой силы беспорядка, а гауссовское случайное поле энергетических уровней вызывает “примесное” рассеяние, которое рассматривается в рамках стандартного подхода, основанного на вычислении усредненных функций Грина [30, 31].

Обобщенный DMFT + Σ подход [15–17, 20] дополняет стандартную теорию динамического среднего поля (DMFT) [12–14] учетом добавочной “внешней” собственно энергетической части (СЭЧ) $\Sigma_{\mathbf{p}}(\epsilon)$

(в общем случае импульсно зависящей), являющейся следствием любого взаимодействия за пределами DMFT и дает эффективный метод вычисления, как одночастичных, так и двухчастичных свойств [18, 19].

Для “внешней” СЭЧ, входящей в DMFT + Σ цикл, в рассматриваемой здесь задаче о рассеянии на беспорядке, мы используем простейшее самосогласованное борновское приближение, пренебрегающее “пересекающимися” диаграммами для примесного рассеяния:

$$\Sigma_{\text{imp}}(\epsilon) = W^2 \sum_{\mathbf{p}} G(\epsilon, \mathbf{p}), \quad (3)$$

где $G(\epsilon, \mathbf{p})$ – полная одноэлектронная функция Грина в DMFT + Σ приближении.

Для решения эффективной однопримесной модели Андерсона в DMFT мы использовали метод численной ренормгруппы (NRG) [32].

Далее рассматриваем модель “затравочной” зоны с полуэллиптической плотностью состояний (на элементарную ячейку и один спин):

$$N_0(\epsilon) = \frac{2}{\pi D^2} \sqrt{D^2 - \epsilon^2}, \quad (4)$$

где D определяет полуширину зоны проводимости, что является неплохим приближением для трехмерного случая. В работе [24] мы показали, что в DMFT + Σ подходе в рассматриваемой модели с полуэллиптической плотностью состояний все влияние беспорядка на *одночастичные* свойства сводится к уширению зоны беспорядком, т.е. к замене $D \rightarrow D_{\text{eff}}$, где D_{eff} – эффективная полуширина “затравочной” зоны в отсутствие электронных корреляций ($U = 0$), уширенная беспорядком:

$$D_{\text{eff}} = D \sqrt{1 + 4 \frac{W^2}{D^2}}. \quad (5)$$

“Затравочная” (в отсутствие U) плотность состояний, “одетая” беспорядком:

$$\tilde{N}_0(\xi) = \frac{2}{\pi D_{\text{eff}}^2} \sqrt{D_{\text{eff}}^2 - \xi^2} \quad (6)$$

остается и в присутствии беспорядка полуэллиптической.

Все расчеты, представленные ниже, были проведены для случая четвертичного заполнения зоны (число электронов на узел решетки $n = 0.5$).

При рассмотрении сверхпроводимости в широком интервале изменений спаривательного взаимодействия U , следуя [22, 24], мы используем приближение Нозьера–Шмитт–Ринка [11], что позволяет качественно правильно (хотя и приближенно) описать

область БКШ-Бозе кроссовера. В таком подходе для определения критической температуры T_c используется [24] обычное уравнение БКШ типа:

$$1 = \frac{U}{2} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \tilde{N}_0(\varepsilon) \frac{th \frac{\varepsilon - \mu}{2T_c}}{\varepsilon - \mu}, \quad (7)$$

в котором химический потенциал μ для разных значений U и W находится из стандартного уравнения на число электронов (заполнение зоны), определяемого полной функцией Грина, рассчитанной в DMFT + Σ приближении. Это позволяет найти T_c в широком интервале значений параметров модели, включая область БКШ–БКЭ кроссовера и предел сильной связи, а также для различных степеней беспорядка. В этом и состоит физический смысл интерполяционной схемы Нозьера и Шмитт-Ринка – в области слабой связи температура перехода контролируется уравнением для куперовской неустойчивости (7), тогда как в пределе сильной связи она определяется как температура БЭК, которая контролируется химическим потенциалом. В работе [24] нами было показано, что влияние беспорядка на критическую температуру T_c в модели с полуэллиптической затравочной плотностью состояний универсально и сводится лишь к изменению эффективной ширины зоны. На рисунке 1, для иллюстрации, приведена

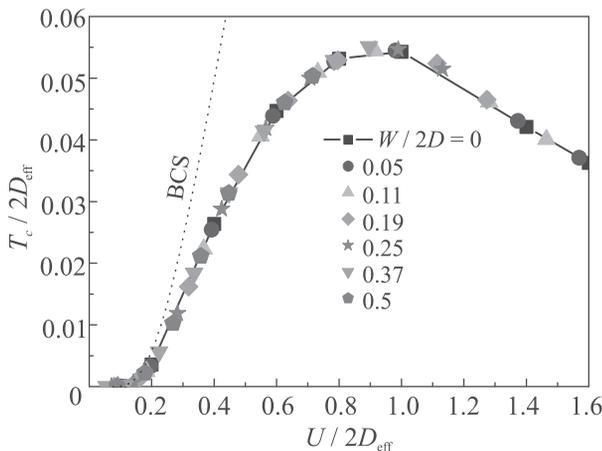


Рис. 1. (Цветной онлайн) Универсальная зависимость температуры сверхпроводящего перехода от силы хаббардовского притяжения для различной степени беспорядка

универсальная зависимость критической температуры T_c от хаббардовского притяжения для различных степеней беспорядка, демонстрирующая выполнение обобщенной теоремы Андерсона [23, 24]. В области слабой связи температура сверхпроводящего перехода хорошо описывается моделью БКШ (на рис. 1 для

сравнения пунктиром приведена кривая, получаемая в модели БКШ, в которой T_c определяется уравнением (7) с независимым от U химическим потенциалом, определяемым условием четвертичного заполнения “голой” зоны), а в области сильной связи критическая температура в основном определяется условием Бозе-конденсации куперовских пар и падает с ростом U , как t^2/U , проходя через максимум при $U/2D_{\text{eff}} \sim 1$. Обзор этих и других результатов, полученных для неупорядоченной модели Хаббарда в DMFT + Σ приближении можно найти в [21].

3. Разложение Гинзбурга–Ландау. Разложение Гинзбурга–Ландау для разности плотностей свободных энергий сверхпроводящего и нормального состояний запишем в стандартном виде [31]:

$$F_s - F_n = A|\Delta_{\mathbf{q}}|^2 + q^2 C|\Delta_{\mathbf{q}}|^2 + \frac{B}{2}|\Delta_{\mathbf{q}}|^4, \quad (8)$$

где $\Delta_{\mathbf{q}}$ – амплитуда фурье-компоненты параметра порядка. Разложение (8) определяется графиками петлевого разложения для свободной энергии в поле флуктуаций параметра порядка (обозначенных пунктирными линиями) с малым волновым вектором \mathbf{q} [31], показанными на рис. 2 [31].

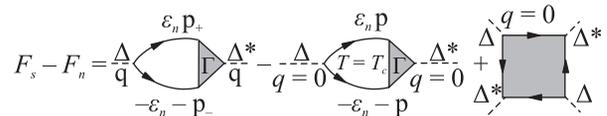


Рис. 2. Диаграммный вид разложения Гинзбурга–Ландау

В рамках подхода Нозьера и Шмитт-Ринка [11] мы используем приближение слабой связи для анализа коэффициентов Гинзбурга–Ландау, поэтому “петли” с двумя и четырьмя куперовскими вершинами, приведенные на рис. 2, не содержат вклада от хаббардовского притяжения, а “одеты” лишь примесным рассеянием. Однако, как и при нахождении T_c , химический потенциал, который существенно зависит от силы связи и в пределе сильной связи определяет условия Бозе конденсации куперовских пар, необходимо находить в рамках полной DMFT + Σ процедуры. В работе [25] мы показали, что в таком подходе коэффициенты A и B определяются следующими выражениями:

$$A(T) = \frac{1}{U} - \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \tilde{N}_0(\varepsilon) \frac{th \frac{\varepsilon - \mu}{2T}}{2(\varepsilon - \mu)}, \quad (9)$$

$$B = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{d\varepsilon}{2(\varepsilon - \mu)^3} \left(th \frac{\varepsilon - \mu}{2T} - \frac{(\varepsilon - \mu)/2T}{ch^2 \frac{\varepsilon - \mu}{2T}} \right) \tilde{N}_0(\varepsilon). \quad (10)$$

При $T \rightarrow T_c$ коэффициент $A(T)$ принимает следующий вид:

$$A(T) \equiv \alpha(T - T_c). \quad (11)$$

В БКШ пределе для коэффициентов α и B получаем стандартный результат [31]:

$$\alpha_{\text{BCS}} = \frac{\tilde{N}_0(\mu)}{T_c} \quad B_{\text{BCS}} = \frac{7\zeta(3)}{8\pi^2 T_c^2} \tilde{N}_0(\mu). \quad (12)$$

Таким образом, коэффициенты A и B определяются лишь уширенной беспорядком плотностью состояний $\tilde{N}_0(\varepsilon)$ и химическим потенциалом. Поэтому в случае полуэллиптической затравочной плотности состояний зависимость этих коэффициентов от беспорядка связана лишь с заменой $D \rightarrow D_{\text{eff}}$ и в присутствие беспорядка наблюдаются универсальные зависимости α и B , обезразмеренных на эффективную ширину зоны, от $U/2D_{\text{eff}}$ [25]. При этом коэффициенты α и B быстро падают с ростом силы связи $U/2D_{\text{eff}}$. Необходимо отметить, что выражения (9) и (10) для коэффициентов A и B получены в [25] с использованием точных тождеств Уорда и остаются справедливыми и в условиях сильного беспорядка (андерсоновской локализации).

Универсальная зависимость от беспорядка, связанная лишь с уширением зоны беспорядком $D \rightarrow D_{\text{eff}}$, возникает и для скачка теплоемкости в температуре перехода [25], определяемого коэффициентами α и B :

$$\Delta C \equiv C_s(T_c) - C_n(T_c) = T_c \frac{\alpha^2}{B}. \quad (13)$$

Такая универсальная зависимость скачка теплоемкости от $U/2D_{\text{eff}}$ приведена на рис. 3. В БКШ пределе

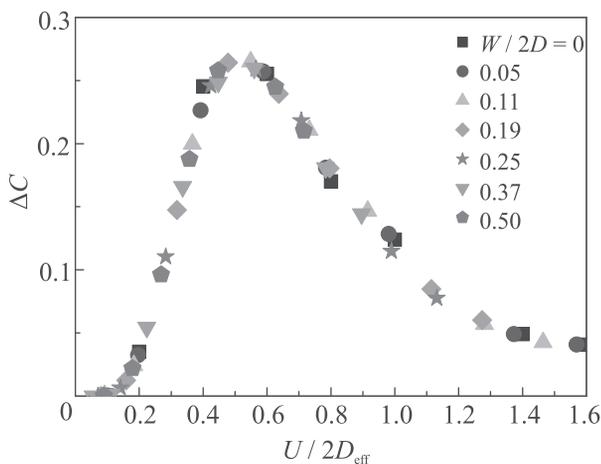


Рис. 3. (Цветной онлайн) Универсальная зависимость скачка теплоемкости от $U/2D_{\text{eff}}$ для различных степеней беспорядка

скачок теплоемкости растет с ростом силы связи, а в БЭК пределе падает, проходя через максимум при $U/2D_{\text{eff}} \approx 0.55$. Такое поведение скачка теплоемкости в основном определяется поведением T_c (см. рис. 1), а отношение $\frac{\alpha^2}{B}$ в (13) плавно зависит от силы связи.

Перейдем, следуя [26, 27], к анализу коэффициента разложения C . Из диаграммного представления разложения Гинзбурга–Ландау, приведенного на рис. 2, ясно, что C определяется коэффициентом перед q^2 в куперовской двухчастичной петле (первое слагаемое на рис. 2). Поэтому для него возникает следующее выражение:

$$C = -T \lim_{q \rightarrow 0} \sum_{n, \mathbf{p}, \mathbf{p}'} \frac{\Psi_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\varepsilon_n, \mathbf{q}) - \Psi_{\mathbf{p}\mathbf{p}'}(\varepsilon_n, 0)}{q^2}, \quad (14)$$

где $\Psi_{\mathbf{p}, \mathbf{p}'}(\varepsilon_n, \mathbf{q})$ – двухчастичная функция Грина в куперовском канале, “одетая” в приближении Нозьера и Шмитт-Ринка лишь примесным рассеянием.

В БКШ пределе и в отсутствие беспорядка коэффициент C принимает стандартный вид [31]:

$$C_{\text{BCS}} = \frac{7\zeta(3)}{16\pi^2 T_c^2} N_0(\mu) \frac{v_F^2}{d}, \quad (15)$$

где v_F – скорость на поверхности Ферми, d – размерность пространства. Влияние беспорядка на коэффициент C не сводится лишь к замене $N_0 \rightarrow \tilde{N}_0$, поэтому в присутствии беспорядка, даже в БКШ пределе, не удастся получить для коэффициента C компактного выражения, аналогичного (15), в отличие от коэффициентов α и B (см. (12)).

После достаточно громоздкого анализа [26, 27] получается следующее общее выражение для коэффициента C :

$$\begin{aligned} C &= -\frac{1}{8\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \frac{th \frac{\varepsilon}{2T}}{\varepsilon} \text{Im} \left(\frac{iD(2\varepsilon) \sum_{\mathbf{p}} \Delta G_{\mathbf{p}}(\varepsilon)}{\varepsilon + i\delta} \right) = \\ &= -\frac{1}{8\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \frac{th \frac{\varepsilon}{2T}}{\varepsilon^2} \text{Re}(D(2\varepsilon) \sum_{\mathbf{p}} \Delta G_{\mathbf{p}}(\varepsilon)) - \\ &\quad - \frac{1}{16T} \text{Im}(D(0) \sum_{\mathbf{p}} \Delta G_{\mathbf{p}}(0)), \end{aligned} \quad (16)$$

где $\Delta G_{\mathbf{p}}(\varepsilon) = G^R(\varepsilon, \mathbf{p}) - G^A(-\varepsilon, \mathbf{p})$, а $D(\omega)$ – зависящий от частоты обобщенный коэффициент диффузии [31, 33–39], который определяется в рамках обобщения самосогласованной теории локализации из следующего уравнения самосогласования [19]:

$$\begin{aligned} D(\omega) &= i \frac{\langle v \rangle^2}{d} \left(\omega - \Delta \Sigma_{\text{imp}}^{RA}(\omega) + \right. \\ &\quad \left. + W^4 \sum_{\mathbf{p}} (\Delta G_{\mathbf{p}}(\varepsilon))^2 \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{\omega + iD(\omega)q^2} \right)^{-1}, \end{aligned} \quad (17)$$

где $\omega = 2\varepsilon$, $\Delta\Sigma_{\text{imp}}^{RA}(\omega) = \Sigma_{\text{imp}}^R(\varepsilon) - \Sigma_{\text{imp}}^A(-\varepsilon)$, d – размерность пространства, а средняя скорость $\langle v \rangle$ определяется следующим выражением:

$$\langle v \rangle = \frac{\sum_{\mathbf{p}} |\mathbf{v}_{\mathbf{p}}| \Delta G_{\mathbf{p}}(\varepsilon)}{\sum_{\mathbf{p}} \Delta G_{\mathbf{p}}(\varepsilon)}; \mathbf{v}_{\mathbf{p}} = \frac{\partial \varepsilon(\mathbf{p})}{\partial \mathbf{p}}. \quad (18)$$

С учетом предела применимости диффузионного приближения, суммирование по q в (17) должно быть ограничено областью [31, 38]:

$$q < k_0 = \text{Min}\{l^{-1}, p_F\}, \quad (19)$$

где l – длина свободного пробега за счет упругого рассеяния на беспорядке, а p_F – импульс Ферми.

Таким образом, возникает интерполяционная схема для определения коэффициента C , которая в пределе слабого беспорядка воспроизводит результаты “лестничного” приближения, а в пределе сильного беспорядка учитывает эффекты андерсоновской локализации (в рамках самосогласованной теории локализации).

Было показано [19, 20], что в DMFT + Σ приближении для модели Андерсона–Хаббарда, критический беспорядок, при котором происходит андерсоновский переход металл–диэлектрик $W/2D = 0.37$ (при выборе величины параметра обрезания как в (19)) и в этом приближении не зависит от величины хаббардовского взаимодействия U . Развитый выше подход для определения коэффициента C позволяет исследовать, в том числе, и область андерсоновского диэлектрика с беспорядком $W/2D > 0.37$.

4. Физические величины вблизи температуры сверхпроводящего перехода. Длина когерентности при данной температуре $\xi(T)$ определяет характерный масштаб неоднородностей сверхпроводящего параметра порядка:

$$\xi^2(T) = -\frac{C}{A}. \quad (20)$$

Из (11) имеем: $A = \alpha(T - T_c)$, то

$$\xi(T) = \frac{\xi}{\sqrt{1 - T/T_c}}, \quad (21)$$

где мы ввели длину когерентности сверхпроводника:

$$\xi = \sqrt{\frac{C}{\alpha T_c}}, \quad (22)$$

которая в пределе слабой связи и в отсутствие беспорядка имеет стандартный вид [31]:

$$\xi_{\text{BCS}} = \sqrt{\frac{C_{\text{BCS}}}{\alpha_{\text{BCS}} T_c}} = \sqrt{\frac{7\zeta(3)}{16\pi^2 d} \frac{v_F}{T_c}}. \quad (23)$$

Глубина проникновения магнитного поля в сверхпроводник определяется как:

$$\lambda^2(T) = -\frac{c^2}{32\pi e^2} \frac{B}{AC}. \quad (24)$$

Таким образом:

$$\lambda(T) = \frac{\lambda}{\sqrt{1 - T/T_c}}, \quad (25)$$

где ввели:

$$\lambda^2 = \frac{c^2}{32\pi e^2} \frac{B}{\alpha C T_c}, \quad (26)$$

которая в отсутствие беспорядка в пределе слабой связи имеет вид:

$$\lambda_{\text{BCS}}^2 = \frac{c^2}{32\pi e^2} \frac{B_{\text{BCS}}}{\alpha_{\text{BCS}} C_{\text{BCS}} T_c} = \frac{c^2}{16\pi e^2} \frac{d}{N_0(\mu) v_F^2}. \quad (27)$$

Отметим, что поскольку λ_{BCS} не зависит от T_c , а значит и от силы связи, ее удобно использовать для нормировки глубины проникновения λ (26) при произвольных U и W .

Вблизи T_c верхнее критическое магнитное поле H_{c2} определяется через коэффициенты Гинзбурга–Ландау как:

$$H_{c2} = \frac{\Phi_0}{2\pi \xi^2(T)} = -\frac{\Phi_0}{2\pi} \frac{A}{C}, \quad (28)$$

где $\Phi_0 = c\pi/e$ – квант магнитного потока. Тогда наклон кривой верхнего критического поля вблизи T_c :

$$\frac{dH_{c2}}{dT} = \frac{\Phi_0}{2\pi} \frac{\alpha}{C}. \quad (29)$$

Коэффициент C является существенно двухчастичной характеристикой, поэтому для него не наблюдается универсальности в зависимости от беспорядка, как для коэффициентов A и B и влияние беспорядка не сводится лишь к уширению эффективной ширины зоны беспорядком. Перейдем к краткому обсуждению основных результатов наших расчетов этого коэффициента (подробнее см. [26, 27]). Коэффициент C быстро уменьшается с ростом силы связи. Особенно сильное падение наблюдается в области слабой связи. Локализационные поправки становятся существенными в пределе достаточно сильного беспорядка ($W/2D > 0.25$). При таком сильном беспорядке локализационные поправки заметно уменьшают коэффициент C в области слабой связи, а в области сильной связи $U/2D > 1$ локализационные поправки фактически не изменяют величину коэффициента, даже в пределе сильного беспорядка $W/2D > 0.37$, где система становится андерсоновским диэлектриком. Это, по-видимому, связано с

тем, что в области такой сильной связи в плотности состояний на уровне Ферми уже открывается (псевдо)щель [22] и вблизи уровня Ферми отсутствуют состояния, которые могли бы локализоваться. На рисунке 4 приведены зависимости коэффициента C от

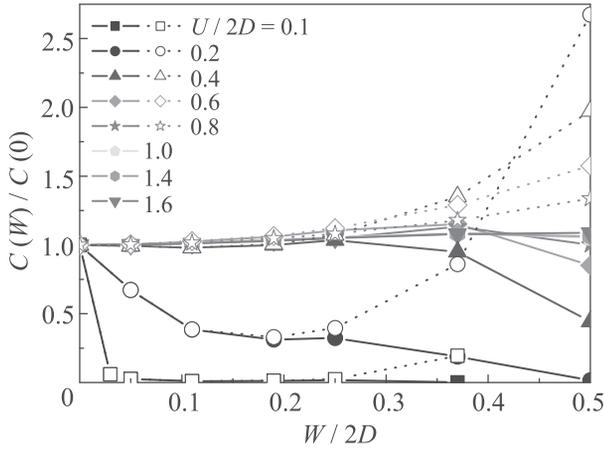


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость коэффициента C , обезразмеренного на этот коэффициент в отсутствие беспорядка, от степени беспорядка для различных значений силы хаббардовского притяжения U . Пунктир – “лестничное” приближение, сплошные кривые – расчеты с учетом локализационных поправок

степени беспорядка для различных значений силы связи $U/2D$. На данном рисунке (и всех последующих в этом разделе) заполненные символы и сплошные линии соответствуют расчетам с учетом локализационных поправок, а незаполненные символы и пунктирные линии соответствуют “лестничному” приближению. В пределе слабой связи ($U/2D = 0.1$) наблюдаем достаточно быстрое падение коэффициента C с ростом беспорядка в области достаточно слабого примесного рассеяния. В области же достаточно сильного беспорядка в “лестничном” приближении может наблюдаться возрастание коэффициента C с ростом беспорядка, что в основном связано с заметным уширением зоны таким сильным беспорядком и соответствующим уменьшением эффективной силы связи $U/2D_{\text{eff}}$. Однако локализационные поправки, которые становятся существенны при сильном беспорядке $W/2D > 0.25$, приводят к уменьшению коэффициента C с ростом беспорядка, в том числе и в пределе сильного примесного рассеяния. В области промежуточной связи ($U/2D = 0.4-0.6$) коэффициент C в “лестничном” приближении лишь незначительно растет с ростом беспорядка. В БЭК пределе ($U/2D > 1$) коэффициент C фактически не зависит от примесного рассеяния и в “лестничном” приближении и с учетом локализационных попра-

вок. Учет локализационных поправок в БЭК пределе фактически не изменяет величину коэффициента C по сравнению с “лестничным” приближением. Поскольку коэффициенты разложения Гинзбурга–Ландау α и B имеют универсальное поведение в зависимости от беспорядка, андерсоновская локализация фактически не оказывает на них влияния, а коэффициент C , который в пределе слабой связи сильно изменяется локализационными поправками, в БЭК пределе фактически не зависит от этих поправок. Соответственно, физические величины, зависящие от коэффициента C , также будут существенно изменяться локализационными поправками в пределе слабой связи, но фактически не чувствуют андерсоновскую локализацию в БЭК пределе.

На рисунке 5 приведена зависимость длины когерентности ξ от степени беспорядка для различных

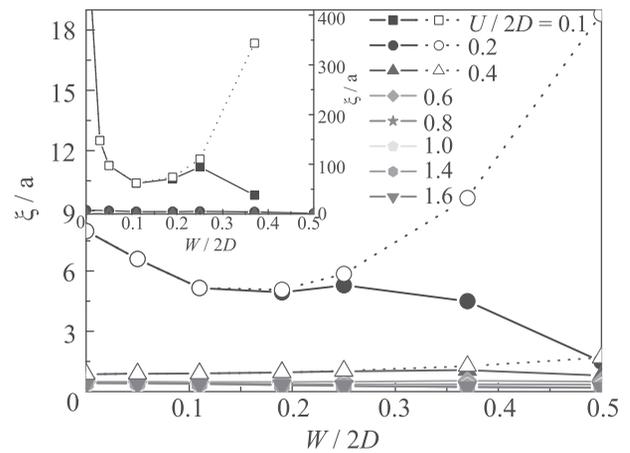


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость длины когерентности от беспорядка при различной величине хаббардовского притяжения. Длина когерентности обезразмерена на параметр решетки a . На вставке: зависимость длины когерентности от беспорядка в пределе слабой связи

величин силы связи. Длина когерентности ξ в области слабой связи быстро падает с ростом U для любой степени беспорядка, достигая величины порядка параметра решетки a в области промежуточной связи $U/2D \sim 0.4-0.6$. Дальнейший рост силы связи очень слабо изменяет длину когерентности. В БКШ пределе, т.е. в пределе слабой связи, при достаточно слабом примесном рассеянии наблюдается (см. вставку рис. 5) стандартная для “грязных” сверхпроводников зависимость $\xi \sim l^{1/2}$, т.е. длина когерентности быстро падает с ростом беспорядка. Однако при достаточно сильном беспорядке в лестничном приближении (пунктирные кривые) длина когерентности начинает расти с ростом беспорядка, что в ос-

новном связано с заметным уширением затравочной зоны беспорядком и соответствующим уменьшением $U/2D_{\text{eff}}$. Локализационные поправки существенны лишь при большом беспорядке ($W/2D > 0.25$) и приводят к заметному уменьшению длины когерентности в БКШ пределе слабой связи и практически не изменяют длину когерентности в БЭК пределе. Учет локализационных поправок приводит к заметному уменьшению длины когерентности по сравнению с “лестничным” приближением в пределе сильного беспорядка, что восстанавливает падение ξ с ростом беспорядка в этом пределе. В стандартной модели БКШ с бесконечно широкой затравочной зоной в пределе слабого беспорядка длина когерентности падает с ростом беспорядка $\xi \sim l^{1/2}$, однако вблизи андерсоновского перехода падение ξ с ростом беспорядка даже ускоряется и $\xi \sim l^{2/3}$ [7–9], в отличие от нашей модели, где вблизи перехода Андерсона длина когерентности достаточно слабо зависит от беспорядка, что связано с существенным уширением зоны беспорядком. С увеличением силы связи $U/2D \geq 0.4$ – 0.6 длина когерентности ξ становится порядка параметра решетки и почти перестает зависеть от беспорядка, в частности, в БЭК пределе очень сильной связи $U/2D = 1.4, 1.6$ рост беспорядка вплоть до очень сильного ($W/2D = 0.5$) приводит к уменьшению длины когерентности примерно в два раза, так что видим, что в пределе сильной связи учет локализационных поправок оказывается несущественным.

На рисунке 6 приведена зависимость глубины проникновения, нормированной на ее БКШ значение в отсутствие беспорядка (27), от силы хаббардовского притяжения U для различных степеней беспорядка. В отсутствие примесного рассеяния глубина проникновения растет с увеличением силы связи. В пределе слабой связи беспорядок в соответствии с теорией “грязных” сверхпроводников приводит к быстрому росту глубины проникновения ($\lambda \sim l^{-1/2}$, где l – длина свободного пробега). С усилением силы связи рост глубины проникновения с увеличением беспорядка замедляется, а в пределе очень сильной связи $U/2D = 1.4, 1.6$ глубина проникновения даже несколько уменьшается с ростом беспорядка. Это приводит к тому, что в присутствии беспорядка наблюдается падение глубины проникновения с ростом силы хаббардовского притяжения в области достаточно слабой связи и рост λ с увеличением U в БЭК пределе сильной связи. Учет локализационных поправок существенен лишь в пределе сильного беспорядка ($W/2D > 0.25$) и приводит к заметному увеличению глубины проникновения, по сравне-

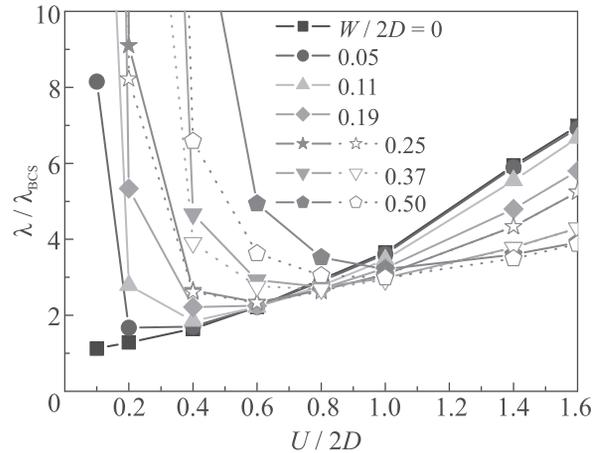


Рис. 6. (Цветной онлайн) Зависимость глубины проникновения, отнормированной на ее БКШ значение в пределе слабой связи, от силы хаббардовского притяжения U для различных степеней беспорядка

нию с “лестничным” приближением в пределе слабой связи. При этом качественно зависимость глубины проникновения от беспорядка не изменяется. В БЭК пределе влияние локализации на глубину проникновения оказывается несущественным. Аналогичная зависимость от беспорядка наблюдается и для безразмерного параметра Гинзбурга–Ландау $\kappa = \lambda/\xi$. В пределе слабой связи параметр Гинзбурга–Ландау быстро растет с беспорядком в соответствии с теорией “грязных” сверхпроводников, где $\kappa \sim l^{-1}$. С увеличением силы связи рост параметра Гинзбурга–Ландау с беспорядком замедляется и в пределе сильной связи $U/2D > 1$ параметр κ практически не зависит от беспорядка. Учет локализационных поправок заметно количественно увеличивает параметр Гинзбурга–Ландау в фазе андерсоновского диэлектрика ($W/2D \geq 0.37$) в области слабой связи. В пределе сильной связи учет локализации снова оказывается несущественным.

На рисунке 7 приведена зависимость наклона верхнего критического поля от беспорядка. В пределе слабой связи опять видим поведение, характерное для “грязных” сверхпроводников, – наклон верхнего критического поля растет с ростом беспорядка (см. вставку рис. 7). Учет локализационных поправок в пределе слабой связи резко увеличивает наклон верхнего критического поля по сравнению с “лестничным” приближением в андерсоновском диэлектрике ($W/2D \geq 0.37$). В результате в андерсоновском диэлектрике наклон верхнего критического поля растет с увеличением примесного рассеяния гораздо быстрее, чем в “лестничном” приближении. В области промежуточной связи ($U/2D = 0.4$ – 0.8)

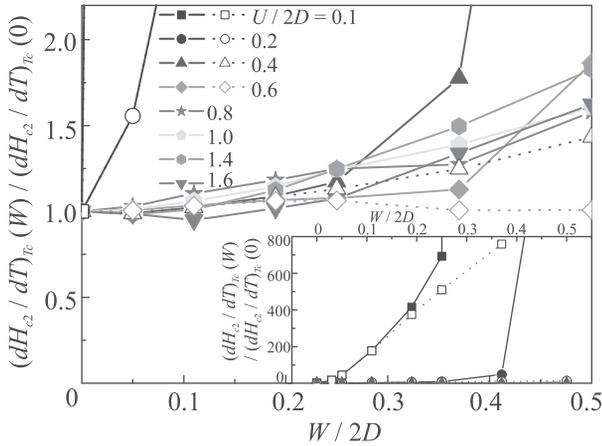


Рис. 7. (Цветной онлайн) Зависимость наклона верхнего критического поля, обезразмеренного на свою величину в отсутствие беспорядка от степени беспорядка при различных значениях силы хаббардовского притяжения. На вставке продемонстрирован рост наклона с беспорядком в пределе слабой связи

наклон верхнего критического поля практически не зависит от примесного рассеяния в области слабого беспорядка. В “лестничном” приближении такое поведение сохраняется и в области сильного беспорядка. Однако учет локализационных поправок приводит к заметному росту наклона с беспорядком в фазе андерсоновского диэлектрика. В пределе очень сильной связи при слабом беспорядке наклон верхнего критического поля может даже несколько уменьшаться с ростом беспорядка, но в пределе сильного беспорядка наклон растет с ростом примесного рассеяния. В БЭК пределе учет локализационных поправок оказывается несущественным и мало изменяет наклон верхнего критического поля по сравнению с “лестничным” приближением.

5. Температурная зависимость орбитально-го верхнего критического поля. Наиболее ярко влияние разупорядочения проявляется в поведении верхнего критического поля в теории “грязных” сверхпроводников. С увеличением беспорядка растет как наклон температурной зависимости верхнего критического поля в T_c [6], так и $H_{c2}(T)$ во всей температурной области [40, 41]. Эффекты андерсоновской локализации в пределе достаточно сильного беспорядка также наиболее ярко проявляют себя в температурной зависимости верхнего критического поля. Непосредственно в точке андерсоновского перехода металл–диэлектрик эффекты локализации приводят к резкому возрастанию H_{c2} в низкотемпературной области и температурная зависимость $H_{c2}(T)$ качественно отличается от зависимости Верт-

хамера, Хельфанда, Хоэнберга (WHH) [40, 41], характерной для теории “грязных” сверхпроводников – кривая $H_{c2}(T)$ становится вогнутой [7–9].

Рассмотрим влияние разупорядочения на температурную зависимость верхнего критического поля $H_{c2}(T)$ в широкой области значений силы притяжения U , включающей область БКШ–БЭК кроссовера, а также для широкой области изменения величины беспорядка, вплоть до окрестности перехода Андерсона [28]. В используемом нами подходе Нозьера–Шмитт–Ринка критическая температура сверхпроводящего перехода определяется совместным решением уравнений для куперовской неустойчивости в куперовском канале частица–частица в приближении слабой связи и уравнения для химического потенциала системы, который во всем интервале значений хаббардовского взаимодействия определяется из условия четвертичного заполнения зоны в рамках приближения DMFT + Σ . Обычное условие для куперовской неустойчивости имеет вид:

$$1 = -U\chi(\mathbf{q}), \quad (30)$$

где $\chi(\mathbf{q})$ – куперовская восприимчивость, определяемая петлей в куперовском канале. В присутствии внешнего магнитного поля суммарный импульс \mathbf{q} в куперовском канале приобретает добавку от вектор-потенциала \mathbf{A} [6, 40, 41]

$$\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{q} - \frac{2e}{c}\mathbf{A}. \quad (31)$$

Поскольку наша модель предполагает изотропный спектр, куперовская восприимчивость $\chi(\mathbf{q})$ зависит от \mathbf{q} лишь через q^2 . Минимальное собственное значение оператора $(\mathbf{q} - \frac{2e}{c}\mathbf{A})^2$, отвечающее орбитальному верхнему критическому магнитному полю $H = H_{c2}$ есть [42]

$$q_0^2 = 2\pi \frac{H}{\Phi_0}, \quad (32)$$

где $\Phi_0 = \frac{ch}{2e} = \frac{\pi\hbar}{e}$ – квант магнитного потока. Тогда уравнение на $T_c(H)$ или $H_{c2}(T)$ остается прежним

$$1 = -U\chi(q^2 = q_0^2). \quad (33)$$

При дальнейшем анализе мы будем пренебрегать относительно слабым влиянием магнитного поля на процессы диффузии (неинвариантностью относительно обращения времени), проявляющимся в неравенстве петель в куперовском и диффузионном каналах. Учет такого влияния магнитного поля анализировался в работах [9, 10, 43, 44], где было продемонстрировано, что такой учет даже вблизи андерсоновского перехода металл–диэлектрик лишь незна-

чительно уменьшает величину $H_{c2}(T)$ в низкотемпературной области. В условиях инвариантности относительно обращения времени и эквивалентности петель в куперовском и диффузионном каналах куперовская восприимчивость определяется петлей в диффузионном канале. В результате уравнение (33) на орбитальное критическое поле $H_{c2}(T)$ принимает вид [28]:

$$1 = -\frac{U}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \text{Im} \left(\frac{\sum_{\mathbf{p}} \Delta G_{\mathbf{p}}(\varepsilon)}{2\varepsilon + iD(2\varepsilon)2\pi \frac{H_{c2}}{\Phi_0}} \right) th \frac{\varepsilon}{2T}. \quad (34)$$

Обобщенный коэффициент диффузии снова определяется в рамках схемы самосогласованной теории локализации, описанной выше.

На рисунке 8 приведены температурные зависимости верхнего критического поля для различных степеней беспорядка в трех интересующих нас областях силы связи: в БКШ пределе слабой связи ($U/2D = 0.2$), в области БКШ–БЭК кроссовера (промежуточная связь $U/2D = 1.0$) и в БЭК пределе сильной связи ($U/2D = 1.6$).

В пределе слабой связи (рис. 8а) рост беспорядка приводит к росту верхнего критического поля во всей области температур в пределе слабого беспорядка ($W/2D < 0.19$), при этом кривые температурной зависимости имеют отрицательную кривизну и по форме близки к стандартной зависимости WHN [40, 41]. С дальнейшим ростом беспорядка без учета локализационных поправок верхнее критическое поле во всей температурной области начинает уменьшаться. Однако учет локализационных поправок в пределе слабой связи в области сильного беспорядка ($W/2D \geq 0.37$) существенно увеличивает верхнее критическое поле и качественно изменяет его температурное поведение, а кривые $H_{c2}(T)$ приобретают положительную кривизну. Верхнее критическое поле быстро растет с ростом беспорядка во всей температурной области.

При промежуточной связи (рис. 8б) в пределе слабого беспорядка температурная зависимость верхнего критического поля становится практически линейной. Верхнее критическое поле во всей температурной области растет с ростом беспорядка. В пределе сильного беспорядка ($W/2D \geq 0.37$) локализационные поправки, как и в пределе слабой связи, увеличивают верхнее критическое поле во всей температурной области. Кривые $H_{c2}(T)$ приобретают положительную кривизну. Однако в области промежуточной связи влияние эффектов от андерсоновской локализации существенно слабее, чем в пределе слабой связи и является существенным лишь в низкотемпературной области.

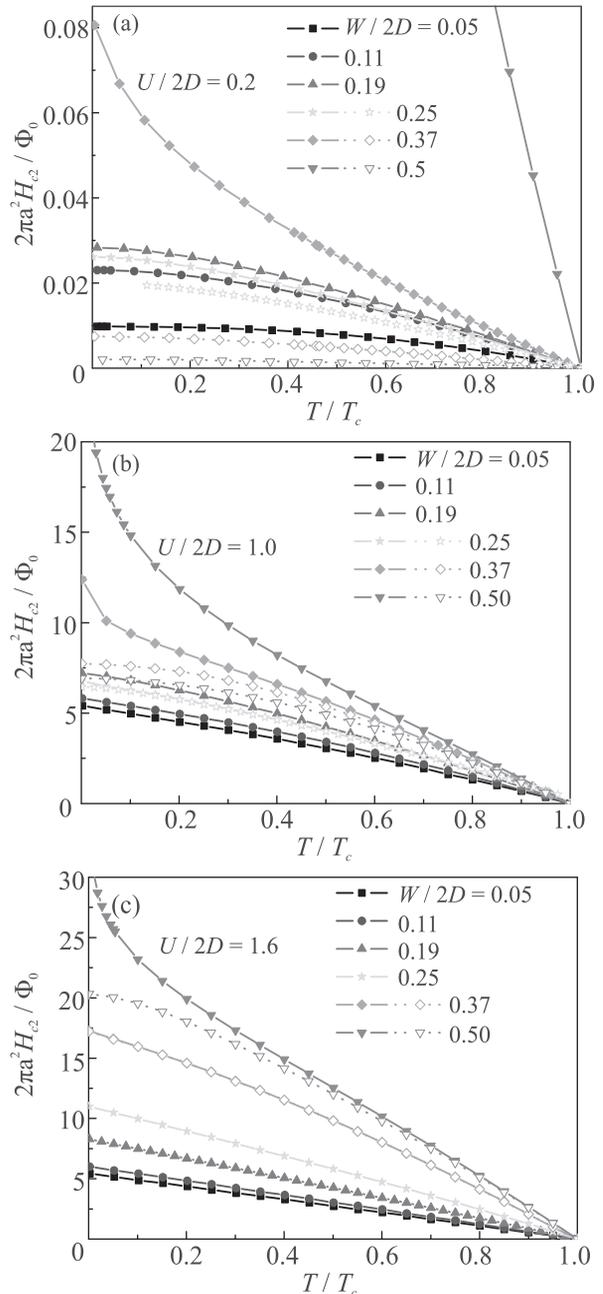


Рис. 8. (Цветной онлайн) Температурная зависимость верхнего критического поля для различных степеней беспорядка: (а) – БКШ пределе слабой связи ($U/2D = 0.2$); (б) – область БКШ–БЭК кроссовера промежуточная связь ($U/2D = 1.0$); (с) – БЭК пределе сильной связи ($U/2D = 1.6$). Заполненные символы и сплошные линии соответствуют расчетам с учетом локализационных поправок. Незаполненные символы и пунктирные линии соответствуют “лестничному” приближению по примесному рассеянию

В БЭК пределе сильной связи (рис. 8с) в области слабого беспорядка кривые $H_{c2}(T)$ являются факти-

чески линейными. Верхнее критическое поле растет с ростом беспорядка во всей температурной области. В пределе сильного беспорядка непосредственно на самом переходе Андерсона ($W/2D = 0.37$) кривая $H_{c2}(T)$ по-прежнему остается линейной и учет локализационных поправок фактически не изменяет температурную зависимость верхнего критического поля. Дальнейшее увеличение беспорядка приводит к росту $H_{c2}(T)$. Глубоко в фазе андерсоновского диэлектрика ($W/2D = 0.5$) кривая $H_{c2}(T)$ приобретает положительную кривизну и учет эффектов андерсоновской локализации увеличивает $H_{c2}(T)$ в низкотемпературной области, в то время как вблизи T_c локализационные поправки оказываются несущественными даже при таком сильном беспорядке. Таким образом, сильная связь существенно ослабляет влияние эффектов локализации на температурное поведение верхнего критического поля.

Итак, рост силы связи U приводит к быстрому возрастанию $H_{c2}(T)$, особенно в низкотемпературной области. В БЭК пределе и в области БКШ–БЭК кроссовера кривая $H_{c2}(T)$ становится практически линейной. Разупорядочение при любой силе связи также приводит к росту $H_{c2}(T)$. В БКШ пределе слабой связи с усилением беспорядка растет как наклон кривой верхнего критического поля вблизи $T = T_c$, так и $H_{c2}(T)$ в низкотемпературной области. В пределе сильного беспорядка, в окрестности перехода Андерсона, локализационные поправки приводят к дополнительному резкому увеличению верхнего критического поля в низкотемпературной области и кривая $H_{c2}(T)$ становится вогнутой, приобретая положительную кривизну. В области БКШ–БЭК кроссовера и в БЭК пределе слабый беспорядок несущественно влияет на наклон верхнего критического поля в T_c , однако сильный беспорядок в окрестности перехода Андерсона приводит к заметному увеличению наклона верхнего критического поля с ростом беспорядка. В низкотемпературной области $H_{c2}(T)$ существенно растет с увеличением беспорядка, особенно в окрестности перехода Андерсона, где за счет локализационных поправок заметно увеличивается $H_{c2}(T = 0)$ и кривая $H_{c2}(T)$ вместо линейной зависимости, характерной в пределе сильной связи при слабом беспорядке, становится вогнутой.

В рассмотренной модели значения верхнего критического поля при низких температурах могут достигать экстремальных значений, достигающих (и даже формально превышающих) $\frac{\Phi_0}{2\pi a^2}$. Это делает актуальным дальнейший анализ модели как с учетом неизбежной роли эффектов квантования элек-

тронного спектра в магнитном поле, так и с учетом парамагнитного эффекта.

6. Температурная зависимость парамагнитного критического магнитного поля. В области слабой связи и слабого беспорядка верхнее критическое магнитное поле сверхпроводника определяется орбитальными эффектами и обычно существенно ниже парамагнитного предела. Однако рост силы связи и беспорядок, как мы видели выше, приводят к быстрому возрастанию орбитального H_{c2} с возможным выходом за парамагнитный предел. В этом разделе мы рассмотрим поведение парамагнитного критического поля в широкой области значений силы притяжения U , включающей область БКШ–БЭК кроссовера и предел очень сильной связи, с учетом беспорядка (в том числе достаточно сильного).

Хорошо известно, что в БКШ пределе слабой связи парамагнитные эффекты (эффекты спинового расщепления) приводят к существованию при низких температурах области на фазовой диаграмме сверхпроводника в магнитном поле, где парамагнитное критическое магнитное поле H_{cp} падает с понижением температуры. Такое поведение свидетельствует о неустойчивости, ведущей к фазовому переходу I рода, в которой может возникнуть фаза Фульде–Феррелла–Ларкина–Овчинникова (ФФЛО) [45–47] с куперовскими парами с конечным импульсом \mathbf{q} и периодическим в пространстве сверхпроводящим параметром порядка. В дальнейшем наше рассмотрение будет ограничено только анализом перехода II рода, а сверхпроводящий параметр порядка будет считаться пространственно однородным, что позволяет определить границы существования неустойчивости к переходу I рода в области БКШ–БЭК кроссовера и сильной связи, в том числе при различных степенях разупорядочения. Вопрос об устойчивости ФФЛО состояния в этих условиях рассматриваться не будет.

В рамках подхода Нозьера и Шмитт-Ринка критическая температура в присутствии спинового расщепления уровней во внешнем магнитном поле (пренебрегая орбитальными эффектами) или парамагнитное критическое магнитное поле H_{cp} при температуре $T < T_c$ определяется следующим уравнением БКШ типа [29]:

$$1 = \frac{U}{4} \int_{-\infty}^{\infty} d\varepsilon \frac{\tilde{N}_0(\varepsilon)}{\varepsilon - \mu} \left(th \frac{\varepsilon - \mu - \mu_B H_{cp}}{2T} + th \frac{\varepsilon - \mu + \mu_B H_{cp}}{2T} \right), \quad (35)$$

в котором химический потенциал μ для разных значений U и W определяется из DMFT + Σ – расчетов,

т.е. из стандартного уравнения для числа электронов в зоне. Следует отметить, что уравнение (35) получено из точного тождества Уорда [29] и остается справедливым в присутствии сильного беспорядка, включая окрестность перехода Андерсона. Уравнение (35) демонстрирует, что все влияние беспорядка на H_{cp} сводится лишь к перенормировке затравочной плотности состояний беспорядком, а значит для затравочной зоны с полуэллиптической плотностью состояний влияние беспорядка на H_{cp} универсально и сводится лишь к уширению зоны беспорядком, т.е. к замене $D \rightarrow D_{\text{eff}}$. Ясно, что парамагнитное критическое поле будет, в общем случае, расти с ростом силы связи U — магнитному полю становится все труднее разорвать пары сильно связанных электронов [29].

На рисунке 9 приведены результаты по влиянию беспорядка на температурную зависимость парамагнитного критического магнитного поля. В БКШ пределе слабой связи (рис. 9а) рост беспорядка приводит как к уменьшению критической температуры в отсутствие магнитного поля T_{c0} (см. [23, 24]), так и к уменьшению критического магнитного поля при всех температурах. Область неустойчивости к переходу I рода сохраняется и в присутствии беспорядка. На самом деле, как уже отмечалось выше, все влияние беспорядка на $H_{cp}(T)$ универсально и связано лишь с заменой $D \rightarrow D_{\text{eff}}$. В результате рост беспорядка приводит к уменьшению эффективной силы связи, определяемой безразмерным параметром $U/2D_{\text{eff}}$. Это и приводит к тому, что с ростом беспорядка относительная ширина температурной области $T/T_c(H)$, где наблюдается переход I рода, заметно увеличивается.

При промежуточной связи ($U/2D = 0.8$) в области БКШ–Бозе кроссовера (рис. 9b) рост беспорядка достаточно слабо изменяет критическую температуру T_{c0} (см. [23, 24]), приводя к некоторому росту $H_{cp}(T)$. Поскольку все влияние беспорядка связано лишь с заменой $D \rightarrow D_{\text{eff}}$, рост беспорядка здесь снова приводит к уменьшению эффективной силы связи $U/2D_{\text{eff}}$ и восстановлению области неустойчивости к переходу I рода.

В БЭК пределе сильной связи рост беспорядка приводит к заметному росту критической температуры T_{c0} (см. [23, 24]). В то же время критическое магнитное поле в низкотемпературной области достаточно слабо растет с ростом беспорядка. В БЭК пределе области неустойчивость к переходу I рода не возникает даже в присутствии очень сильного беспорядка ($W/2D = 0.5$). На самом деле и в БЭК пределе влияние беспорядка универсально и связано лишь с заменой $D \rightarrow D_{\text{eff}}$. В результате, если обезразмерить

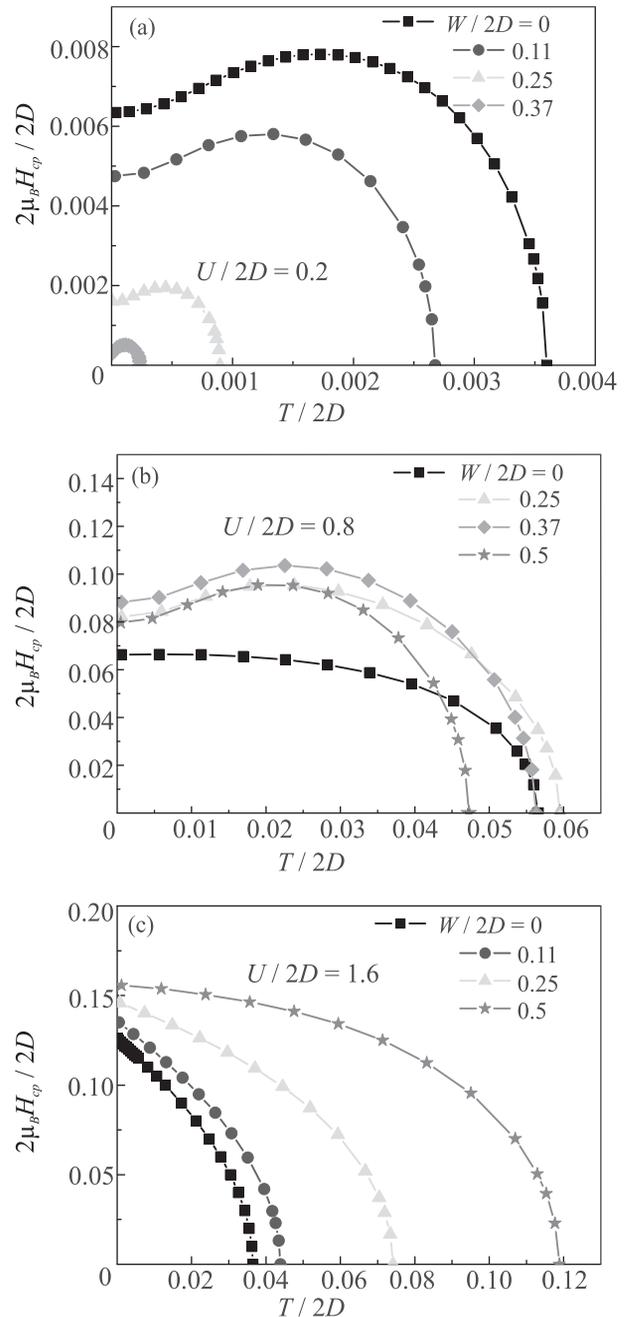


Рис. 9. (Цветной онлайн) Температурная зависимость парамагнитного критического магнитного поля для различных степеней беспорядка: (а) – БКШ предел слабой связи ($U/2D = 0.2$); (б) – область БКШ–БЭК кроссовера (промежуточная связь: $U/2D = 0.8$); (с) – БЭК предел сильной связи ($U/2D = 1.6$)

спиновое расщепление и температуру на эффективную ширину зоны $2D_{\text{eff}}$ и держать постоянной эффективную силу связи $U/2D_{\text{eff}}$, мы получим универсальную температурную зависимость парамагнитного критического магнитного поля. На рисунке 10 мы

показываем примеры такого универсального поведения для типичных случаев слабой и сильной связи в отсутствии и в присутствии беспорядка.

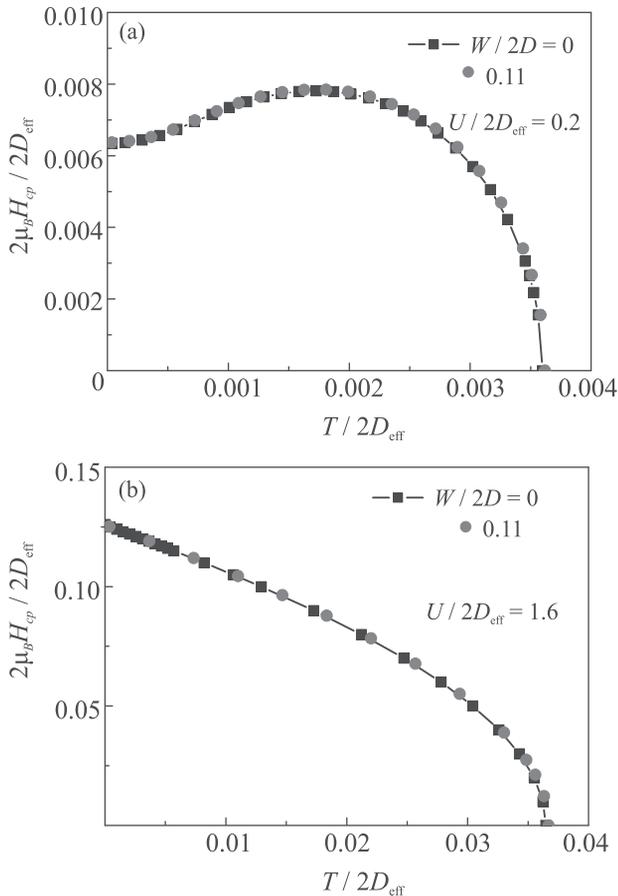


Рис. 10. (Цветной онлайн) Универсальность температурной зависимости парамагнитного критического магнитного поля от степени беспорядка. (а) – Слабая связь $U/2D_{\text{eff}} = 0.2$, $W = 0$ и $W = 0.11$. (б) – Сильная связь $U/2D_{\text{eff}} = 1.6$, $W = 0$ и $W = 0.11$

В отсутствие беспорядка в БЭК пределе сильной связи $U/2D = 1.6$ при $T \rightarrow 0$ мы имеем $2\mu_B H_{cp}/2D \approx 0.125$, что для характерной ширины зоны $2D \sim 1$ эВ дает $H_{cp} \sim 10^7$ Гс. Для орбитального критического магнитного поля (см. [28]) в такой же модели, при этой же силе связи и $T \rightarrow 0$, для характерного значения параметра решетки $a = 3.3 \cdot 10^{-8}$ см, мы получаем $H_{c2} \approx 1.6 \cdot 10^8$ Гс. Таким образом, орбитальное критическое магнитное поле в низкотемпературной области растет с ростом силы связи гораздо быстрее парамагнитного и в БЭК пределе сильной связи основной вклад в верхнее критическое магнитное поле при низких температурах будет именно за счет парамагнитного эффекта. Рост беспорядка приводит к значительному росту орбитального критического магнитного поля [28], тогда как $H_{cp}(T \rightarrow 0)$ в обла-

сти БКШ–Бозе кроссовера и в БЭК пределе относительно слабо зависит от беспорядка. Таким образом, и в присутствии беспорядка в БЭК пределе основной вклад в верхнее критическое магнитное поле при низких температурах будет давать именно парамагнитный эффект.

Итак, рост силы связи U приводит к быстрому возрастанию $H_{cp}(T)$ и исчезновению в области БКШ–БЭК кроссовера и в БЭК пределе области неустойчивости к фазовому переходу I рода, возникающей при низких температурах в БКШ пределе слабой связи. Физически это связано с тем, что магнитному полю становится все труднее разорвать электроны в сильно связанных парах. Рост беспорядка в БКШ пределе слабой связи приводит как к уменьшению критической температуры в отсутствие беспорядка, так и к падению $H_{cp}(T)$. Область неустойчивости к переходу I рода при низких температурах в присутствии беспорядка сохраняется. В области промежуточной связи ($U/2D = 0.8$) беспорядок достаточно слабо влияет как на критическую температуру, так и на $H_{cp}(T)$. Однако рост беспорядка приводит к восстановлению при низких температурах области неустойчивости к переходу I рода, которая не наблюдается в отсутствие беспорядка. Этот, достаточно неожиданный, вывод целиком связан со спецификой модели Хаббарда с притяжением, в которой возникает эффективный безразмерный параметр $U/2D_{\text{eff}}$, контролирующий силу связи в неупорядоченном случае.

В БЭК пределе в низкотемпературной области, при разумных параметрах модели, парамагнитное критическое магнитное поле оказывается заметно меньше орбитального так, что верхнее критическое поле в этой области, в основном, определяется именно парамагнитным критическим полем. В присутствии беспорядка этот вывод тем более сохраняется, поскольку орбитальное критическое поле быстро растет с ростом беспорядка, а парамагнитное критическое поле в этом пределе слабо изменяется с разупорядочением.

7. Заключение. В данной работе, в рамках приближения Нозьера–Шмитт-Ринка и DMFT + Σ обобщения теории динамического среднего поля мы исследовали влияние разупорядочения, в том числе и сильного (область андерсоновской локализации), на разложение Гинзбурга–Ландау и поведение связанных с ними физических величин вблизи T_c , а также верхнего критического магнитного поля (орбитального и парамагнитного) в неупорядоченной модели Андерсона–Хаббарда с притяжением, для широкой области значений потенциала притяжения U , от об-

ласти слабой связи, где неустойчивость нормальной фазы и сверхпроводимость хорошо описываются моделью БКШ, вплоть до предела сильной связи, где переход в сверхпроводящее состояние связан с Бозе-конденсацией компактных куперовских пар, образующихся при температуре, существенно выше температуры перехода в сверхпроводящее состояние.

Ввиду ограниченности объема данного обзора выше была приведена только часть полученных нами результатов. Дальнейшие детали, так же как и подробности вывода основных уравнений, можно найти в оригинальных работах [25–29].

Заметим, что все результаты, полученные в данной работе неявно использовали предположение о самоусредняемости сверхпроводящего параметра порядка, входящего в разложение Гинзбурга–Ландау. Хорошо известно [9], что данное предположение становится, вообще говоря, неприменимым вблизи андерсоновского перехода металл–диэлектрик, что связано с развивающимися здесь сильными флуктуациями локальной плотности состояний, приводящей к сильным пространственным флуктуациям параметра порядка [48] и неоднородной картине сверхпроводящего перехода [49]. Эта проблема, в контексте задачи о сверхпроводимости в области БКШ–БЭК кроссовера и в области сильной связи представляет большой интерес и заслуживает дальнейшего изучения.

Работа выполнена при частичной поддержке гранта Российского фонда фундаментальных исследований # 20-02-00011.

1. А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, ЖЭТФ **36**, 319 (1958) [Sov. Phys. JETP **9**, 220 (1959)].
2. А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, ЖЭТФ **35**, 1158 (1958) [Sov. Phys. JETP **9**, 1090 (1959)].
3. Л. П. Горьков, ЖЭТФ **36**, 1918 (1959) [Sov. Phys. JETP **36**, 1364 (1959)].
4. А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, ЖЭТФ **39**, 1781 (1960) [Sov. Phys. JETP **12**, 1243 (1961)].
5. P. W. Anderson, J. Phys. Chem. Solids **11**, 26 (1959).
6. P. G. De Gennes, *Superconductivity of Metals and Alloys*, W. A. Benjamin, NY (1966).
7. Л. Н. Булаевский, М. В. Садовский, Письма ЖЭТФ **39**, 524 (1984) [JETP Lett. **39**, 640 (1984)].
8. L. N. Bulaevskii, M. V. Sadovskii, J. Low. Temp. Phys. **59**, 89 (1985).
9. M. V. Sadovskii, Phys. Rep. **282**, 226 (1997).
10. M. V. Sadovskii, *Superconductivity and Localization*, World Scientific, Singapore (2000).
11. P. Nozieres and S. Schmitt-Rink, J. Low Temp. Phys. **59**, 195 (1985).
12. Th. Pruschke, M. Jarrell, and J. K. Freericks, Adv. Phys. **44**, 187 (1995).
13. A. Georges, G. Kotliar, W. Krauth, and M. J. Rozenberg, Rev. Mod. Phys. **68**, 13 (1996).
14. D. Vollhardt, in *Lectures on the Physics of Strongly Correlated Systems XIV*, ed. by A. Avella and F. Mancini, AIP Conference Proceedings, AIP, Melville, N.Y. (2010), v. 1297, p. 339; ArXiv: 1004.5069.
15. E. Z. Kuchinskii, I. A. Nekrasov, and M. V. Sadovskii, Письма в ЖЭТФ **82**, 217 (2005) [JETP Lett. **82**, 198 (2005)].
16. M. V. Sadovskii, I. A. Nekrasov, E. Z. Kuchinskii, Th. Pruschke, and V. I. Anisimov, Phys. Rev. B **72**(15), 155105 (2005).
17. E. Z. Kuchinskii, I. A. Nekrasov, and M. V. Sadovskii, ФНТ **32**, 528 (2006) [Low Temp. Phys. **32**, 398 (2006)].
18. E. Z. Kuchinskii, I. A. Nekrasov, and M. V. Sadovskii, Phys. Rev. B **75**, 115102 (2007).
19. E. Z. Kuchinskii, I. A. Nekrasov, and M. V. Sadovskii, ЖЭТФ **133**, 670 (2008) [JETP **106**, 581 (2008)].
20. Э. З. Кучинский, И. А. Некрасов, М. В. Садовский, УФН **182**, 345 (2012) [Physics Uspekhi **53**, 325 (2012)].
21. E. Z. Kuchinskii and M. V. Sadovskii, ЖЭТФ **149**, 589 (2016) [JETP **122**, 509 (2016)].
22. N. A. Kuleeva, E. Z. Kuchinskii, and M. V. Sadovskii, ЖЭТФ **146**, 304 (2014) [JETP **119**, 264 (2014)].
23. E. Z. Kuchinskii, N. A. Kuleeva, and M. V. Sadovskii, Письма ЖЭТФ **100**, 213 (2014) [JETP Lett. **100**, 192 (2014)].
24. E. Z. Kuchinskii, N. A. Kuleeva, and M. V. Sadovskii, ЖЭТФ **147**, 1220 (2015) [JETP **120**, 1055 (2015)].
25. E. Z. Kuchinskii, N. A. Kuleeva, and M. V. Sadovskii, ЖЭТФ **149**, 430 (2016) [JETP **122** 375 (2016)].
26. E. Z. Kuchinskii, N. A. Kuleeva, and M. V. Sadovskii, ФНТ **43**, 22 (2017) [Low Temp. Phys. **42**(1), 17 (2017)].
27. Э. З. Кучинский, Н. А. Кулеева, М. В. Садовский, ЖЭТФ **152**, 133 (2017) [JETP **125**, 111 (2017)].
28. Э. З. Кучинский, Н. А. Кулеева, М. В. Садовский, ЖЭТФ **152**, 1321 (2017) [JETP **125**(6), 1127 (2017)].
29. Э. З. Кучинский, Н. А. Кулеева, М. В. Садовский, ЖЭТФ **154**, 881 (2018) [JETP **127**, 753 (2018)].
30. А. А. Абрикосов, Л. П. Горьков, И. Е. Дзялошинский, *Методы квантовой теории поля в статистической физике*, Физматгиз, М. (1963) [A. A. Abrikosov, L. P. Gor'kov, and I. E. Dzyaloshinskii, *Quantum Field Theoretical Methods in Statistical Physics*, Pergamon Press, Oxford (1965)].
31. М. В. Садовский, *Диаграмматика*, Москва–Ижевск, (2019) [M. V. Sadovskii, *Diagrammatics*, World Scientific, Singapore (2019)].
32. R. Bulla, T. A. Costi, and T. Pruschke, Rev. Mod. Phys. **60**, 395 (2008).
33. D. Vollhardt and P. Wölfle, Phys. Rev. B **22**, 4666 (1980).

34. D. Vollhardt and P. Wölfle, Phys. Rev. Lett. **48**, 699 (1982).
35. P. Wölfle and D. Vollhardt, in *Anderson Localization*, ed. by Y. Nagaoka and H. Fukuyama, Springer Series in Solid State Sciences, Springer Verlag, Berlin (1982), v. 39, p. 26.
36. А. В. Мясников, М. В. Садовский, ФТТ **24**, 3569 (1982) [Sov. Phys.-Solid State **24**, 2033 (1982)].
37. E. A. Kotov and M. V. Sadovskii, Zs. Phys. B **51**, 17 (1983).
38. M. V. Sadovskii, in *Soviet Scientific Reviews – Physics Reviews*, ed. by I. M. Khalatnikov, Harwood Academic Publ., NY (1986), v. 7, p. 1.
39. D. Vollhardt and P. Wölfle, in *Electronic Phase Transitions*, ed. by W. Hanke and Yu. V. Kopayev, North-Holland, Amsterdam (1992), v. 32, p. 1.
40. N. R. Werthamer and E. Helfand, Phys. Rev. **147**, 288 (1966).
41. N. R. Werthamer, E. Helfand, and P. C. Hohenberg, Phys. Rev. **147**, 295 (1966).
42. Е. М. Лифшиц, Л. П. Питаевский, *Статистическая физика*, ГРФМЛ “Наука”, М. (1978), ч. 2, гл. 5 [E. M. Lifshits and L. P. Pitaevskii, *Statistical Physics*, Pergamon Press, Oxford (1980), part 2, ch. 5].
43. Э. З. Кучинский, М. В. Садовский, СФХТ **4**, 2278 (1991) [Superconductivity: Physics, Chemistry, Technology **4**, 2278 (1991)].
44. E. Z. Kuchinskii and M. V. Sadovskii, Physica C **185–189**, 1477 (1991).
45. P. Fulde and R. A. Ferrell, Phys. Rev. A **135**, 550 (1964).
46. А. И. Ларкин, Ю. Н. Овчинников, ЖЭТФ **47**, 1136 (1964).
47. Д. Сан-Жам, Г. Сарма, Е. Томас, *Сверхпроводимость второго рода*, Мир, М. (1970) [D. Saint-James, G. Sarma, E. J. Thomas, *Type II Superconductivity*, Pergamon Press, Oxford (1969)].
48. Л. Н. Булаевский, М. В. Садовский, Письма ЖЭТФ **43**, 76 (1986) [JETP Lett. **43**, 99 (1986)].
49. Л. Н. Булаевский, С. В. Панюков, М. В. Садовский, ЖЭТФ **92**, 672 (1987) [JETP **65**, 380 (1987)].

Investigation insights into electronic structures, exchange splittings, induced ferromagnetism and half-metallic feature in new Ti-doped BaS

B. Doumi^{+*1)}, *A. Mokaddem*^{*×1)}, *A. Tadjer*[°]

⁺*Faculty of Sciences, Department of Physics, Dr. Tahar Moulay University of Saida, 20000 Saida, Algeria*

^{*}*Instrumentation and Advanced Materials Laboratory, University Center of Nour Bachir El-Bayadh, 32000 El-Bayadh, Algeria*

[×]*University Center of Nour Bachir El-Bayadh, 32000 El-Bayadh, Algeria*

[°]*Modelling and Simulation in Materials Science Laboratory, Physics Department, Djillali Liabes University of Sidi Bel-Abbes, 22000 Sidi Bel-Abbes, Algeria*

Submitted 19 September 2020
Resubmitted 27 September 2020
Accepted 27 September 2020

DOI: 10.31857/S1234567820210065

The new $\text{Ba}_{1-x}\text{Ti}_x\text{S}$ compounds based on the titanium (Ti)-doped BaS at various concentrations $x = 0.25$, 0.5 and 0.75 were characterized using the first-principle concepts of density functional theory. We investigated the doping effect of titanium on the structural and electronic properties, induced ferromagnetism, half-metallicity and exchange splittings in $\text{Ba}_{1-x}\text{Ti}_x\text{S}$ materials. The generalized gradient approximation of Wu and Cohen is employed to compute structural properties, while the Tran–Blaha modified Becke–Johnson potential is used to determine magnetic properties and electronic structures with perfect gaps.

The origin of ferromagnetism in the $\text{Ba}_{1-x}\text{Ti}_x\text{S}$ compounds is due to the localized partially occupied 3d (Ti) states related to the double exchange mechanism. The electronic structures of $\text{Ba}_{1-x}\text{Ti}_x\text{S}$ at concentrations $x = 0.25$ and 0.5 show half-metallic ferromagnetic character with spin polarization of 100%. For concentration $x = 0.75$ the $\text{Ba}_{0.25}\text{Ti}_{0.75}\text{S}$ exhibits a metallic nature for two spins channels due to widening 3d (Ti) states in the gap. Therefore, $\text{Ba}_{1-x}\text{Ti}_x\text{S}$ at concentrations $x = 0.25$ and 0.5 seems to be potential candidates for spintronics.

Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364020210018

¹⁾e-mail: bdoummi@yahoo.fr, mokaddem.allel@gmail.com; author's ORCID ID: <http://orcid.org/0000-0003-1563-8587>

Спинорный Бозе газ частиц малой плотности с произвольным СПИНОМ

В. С. Бабиченко⁺, И. Я. Полищук^{+*1)}

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

^{*}Российский научный центр “Курчатовский институт”, 123182 Москва, Россия

Поступила в редакцию 24 августа 2020 г.

После переработки 29 сентября 2020 г.

Принята к публикации 30 сентября 2020 г.

Исследуются свойства основного состояния и спектр элементарных возбуждений ультрахолодного разреженного 3D Бозе газа частиц с произвольным, отличным от нуля спином. Предполагается, что затравочное взаимодействие состоит из двух частей – короткодействующего, изотропного взаимодействия, не зависящего от ориентации спинов, и дальнедействующего анизотропного спин-спинового взаимодействия диполь-дипольного типа. Получено уравнение Гросса–Питаевского. С его помощью показано, что важную роль в формировании спиновой структуры основного состояния и зависимости химического потенциала от плотности играет перенормированное взаимодействие, определяемое вкладом больших импульсов. Установлено, что существует диапазон параметров парного потенциала затравочного взаимодействия, в котором основное состояние является ферромагнитным. Найдены критерии, когда это состояние устойчиво. Получено уравнение, описывающее динамику плотности спина. Получен спектр элементарных возбуждений.

DOI: 10.31857/S1234567820210077

Спинорный Бозе газ (СБГ) при низких температурах, в котором наряду с короткодействующим взаимодействием между частицами имеется заметное дальнедействующее спин-спиновое взаимодействие, представляет собой квантовую систему, в которой наряду со сверхтекучестью может иметь место магнитный порядок. Исследование свойств таких систем представляет большой теоретический и экспериментальный интерес [1–9]. Основной целью данной работы является исследование роли дальнедействующего спин-спинового взаимодействия в формировании спиновой структуры основного состояния. В то же время, амплитуда рассеяния для короткодействующей компоненты взаимодействия, вообще говоря, может зависеть от суммарного спина частиц, что может влиять на спиновую структуру. С учетом указанной цели работы, для простоты предполагается, что ключевое при низких температурах s -рассеяние, связанное с короткодействующей частью потенциала взаимодействия, не зависит от ориентации спинов сталкивающихся частиц. Не говоря о модельном характере такой постановки задачи, можно показать, что это предположение оправдывается тем, что оно имеет место, если амплитуда рассеяния парного межатомного короткодействующего взаимодей-

ствия в канале с фиксированным суммарным спином сталкивающихся частиц одинакова для всех каналов [2, 3]. Это с большой точностью выполняется, например, для такого спинорного газа, как ^{87}Rb [3].

Для Бозе газа с рассматриваемым затравочным потенциалом получены уравнения Гросса–Питаевского и найдена спиновая структура Бозе конденсата. Показано, что важную роль в определении спиновой структуры основного состояния и зависимости химического потенциала от плотности играет перенормированное взаимодействие, определяемое вкладом больших импульсов. Установлено, что при определенных соотношениях между параметрами парного потенциала затравочного взаимодействия основное состояние является ферромагнитным. Получены условия, когда это состояние устойчиво. Из уравнений Гросса–Питаевского получено уравнение, описывающее динамику спиновых флуктуаций. Оно является аналогом уравнения Ландау–Лифшица для гайзенберговского ферромагнетика. Получены уравнения для функций Грина надконденсатных частиц. Найден спектр элементарных возбуждений. Используется система единиц, в которой постоянная Планка $\hbar = 1$.

В данной работе изучаются свойства 3D Бозе газа частиц с произвольным спином S малой плотности ρ при температуре, равной нулю. Затравоч-

¹⁾e-mail: iyppolishchuk@gmail.com

ное взаимодействие между частицами предполагается состоящим из двух частей. Одна часть – это короткодействующее, отталкивательное, независящее от спина взаимодействие типа плотность-плотность, радиус действия которого a_c является самым малым масштабом размерности длины, в результате чего потенциал этого взаимодействия может быть записан в виде выражения, пропорционального δ -функции $V^c(\mathbf{R}) = g_0\delta(\mathbf{R})$, где $\mathbf{R} = \mathbf{r} - \mathbf{r}'$, и \mathbf{r}, \mathbf{r}' – координаты взаимодействующих частиц. Другая часть – это далекодействующее спин-спиновое взаимодействие типа плотность спина – плотность спина, потенциал которого имеет диполь-дипольный вид $V_{ij}^{(s)}(\mathbf{R}) = \gamma \frac{R^2 \delta_{i,j} - 3\mathbf{R}^i \mathbf{R}^j}{R^5} = -\gamma \nabla^i \nabla^j \frac{1}{R}$, $\gamma > 0$. Это выражение справедливо для R , больших некоторой характерной длины a_s ($R \gg a_s$) такой, что $\rho^{-1/3} \gg a_s \gg a_c$, ρ – концентрация частиц.

В качестве базиса разложения операторов рождения и уничтожения $\hat{\psi}^+, \hat{\psi}$ используются не состояния $|m\rangle$, собственные для z -проекции оператора спина \hat{s}_z с собственным значением m (m – целые числа $-S \leq m \leq S$), а спиновые когерентные состояния (СКС) $|\mathbf{n}\rangle$ [10–12], где \mathbf{n} – единичный вектор, $\mathbf{n} = (\sin \theta \cos \varphi; \sin \theta \sin \varphi; \cos \theta)$, а θ, φ – сферические углы. СКС использовались ранее для исследования свойств многочастичных спиновых систем, представляющих собой систему неподвижных взаимодействующих гайзенберговских спинов [13–18]. Ниже СКС используются для исследования свойств движущихся взаимодействующих Бозе частиц с отличным от нуля спином S .

СКС могут быть получены из состояния $|m\rangle$, с $m = -S$, причем

$$|\mathbf{n}\rangle = \hat{D}(\mathbf{n})| -S\rangle, \quad (1)$$

где оператор

$$\hat{D}(\mathbf{n}) = \exp(i\theta(\boldsymbol{\kappa} \cdot \hat{\mathbf{s}})). \quad (2)$$

Здесь $\boldsymbol{\kappa} = (\sin \varphi; -\cos \varphi; 0)$. Поэтому $\boldsymbol{\kappa} \perp \mathbf{n}$, $\boldsymbol{\kappa} \perp \mathbf{n}_0$, где $\mathbf{n}_0 = (0; 0; 1)$. При $\mathbf{n} = \mathbf{n}_0$ угол $\theta = 0$, в связи с чем $\hat{D}(\mathbf{n}_0) = \hat{1}$, где $\hat{1}$ – единичный оператор, и СКС $|\mathbf{n}_0\rangle \equiv | -S\rangle$. В представлении СКС условие полноты имеет вид

$$\sum_{\mathbf{n}} |\mathbf{n}\rangle \langle \mathbf{n}| = \hat{1}, \quad (3)$$

а оператор спина $\hat{\mathbf{s}}$ может быть представлен в виде

$$\hat{\mathbf{s}} = -(S+1) \sum_{\mathbf{n}} |\mathbf{n}\rangle \mathbf{n} \langle \mathbf{n}|, \quad (4)$$

где $\sum_{\mathbf{n}} = (2S+1) \int \frac{d^2\mathbf{n}}{4\pi}$. Переход от операторов уничтожения $\hat{\psi}_m$ в представлении состояний $|m\rangle$ к

операторам уничтожения $\hat{\psi}_{\mathbf{n}}$ в представлении СКС определяется следующим образом:

$$\hat{\psi}_{\mathbf{n}} = \sum_{m=-S}^S \langle \mathbf{n}|m\rangle \hat{\psi}_m, \quad (5)$$

при этом (3) дает возможность записать обратное преобразование в виде

$$\hat{\psi}_m = \sum_{\vec{n}} \langle m|\mathbf{n}\rangle \hat{\psi}_{\mathbf{n}}. \quad (6)$$

Заметим, что в пространстве функций $\psi_{\mathbf{n}}$ вида (5) выражение $\langle \mathbf{n}_1|\mathbf{n}_2\rangle$ является аналогом δ -функции $\delta(\mathbf{n}_1 - \mathbf{n}_2)$, что является следствием свойства (3).

В дальнейшем анализируется низкоэнергетическое поведение системы, определяемое возбуждениями с импульсами $|\mathbf{p}| \ll \sqrt{2m_0\mu}$, где μ – химический потенциал системы, а m_0 – масса частицы. При этом большие импульсы $|\mathbf{p}| \gg \sqrt{2m_0\mu}$ дают основной вклад в перенормировку затравочного взаимодействия между возбуждениями с малой энергией, которая, в силу малости ρ , определяется последовательностью лестничных диаграмм. Суммирование этих диаграмм приводит к тому, что эффективное взаимодействие по-прежнему состоит из двух частей. Одна часть – перенормированное локальное бесспиновое взаимодействие, которое имеет вид $V^{(cr)}(\mathbf{R}) = g\delta(\mathbf{R})$, где $g = \frac{4\pi}{m_0}a_c$. Вторая часть – перенормированное спин-спиновое взаимодействие. Ниже, для простоты, чтобы ухватить физику явления, мы подробно рассматриваем случай, когда имеет место условие

$$\gamma(S+1)^2/a_s \ll 1, \quad (7)$$

при котором, вычисляя полную вершинную часть, можно ограничиться первым порядком теории возмущений по затравочному спин-спиновому взаимодействию $V_{ij}^{(s)}(\mathbf{R})$. (Область параметров, выходящая за пределы условия (7), качественно не меняющая выводов работы, рассмотрена в конце статьи). В случае (7) перенормированное спин-спиновое взаимодействие для $R \gg a_s$, при очевидном условии $a_c/a_s \ll 1$, может быть записано в виде

$$V_{ij}^{(sr)}(\mathbf{R}) = V_{ij}^{(s)}(\mathbf{R}) - \frac{8}{3} \frac{a_c}{a_s} \gamma \delta(\mathbf{R}) \delta_{i,j}. \quad (8)$$

Подчеркнем, что при выводе (8) затравочное локальное взаимодействие учитывалось во всех порядках теории возмущений (в лестничном приближении).

Заметим, что, если в затравочном спин-спиновом взаимодействии $V_{ij}^{(s)}(\mathbf{R})$, первом слагаемом справа в (8), положить $i = j$ и регуляризовать его на больших

R , например, экспонентой $\exp(-\varkappa R)$ при $\varkappa \rightarrow 0$, то Фурье-компонента этого потенциала с импульсом передачи $\mathbf{k} = 0$ обратится в нуль. Поэтому второй член справа в (8), несмотря на его малость по параметру a_c/a_s , необходимо удерживать.

Использование (3), (4) и (5) дает возможность записать производящий функционал системы

$$Z[J, \bar{J}] = \int D\psi D\bar{\psi} \exp\left(iS_0 + iS_{\text{int}}^{(c)} + iS_{\text{int}}^{(s)} + iS_J\right)$$

в представлении СКС. Здесь S_0 – свободное действие, $S_{\text{int}}^{(c)}$ – часть действия, определяемая независимым от спина взаимодействием, $S_{\text{int}}^{(s)}$ – спин-спиновым взаимодействием, S_J – инфинитезимальными источниками J ,

$$S_0 = \int dt d\mathbf{r} \sum_{\mathbf{n}} \left\{ \bar{\psi}_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}) \left(i\partial_t + \mu + \frac{1}{2m} \Delta \right) \psi_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}) \right\}, \quad (9)$$

$$S_{\text{int}}^{(c)} = -\frac{1}{2} \int dt d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \left\{ \rho(t, \mathbf{r}) V^{(cr)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \rho(t, \mathbf{r}') \right\}, \quad (10)$$

$$S_{\text{int}}^{(s)} = -\int dt d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \left\{ \mathbf{S}^i(t, \mathbf{r}) V_{ij}^{(sr)}(\mathbf{r} - \mathbf{r}') \mathbf{S}^j(t, \mathbf{r}') \right\}, \quad (11)$$

$$S_J = \int dt d\mathbf{r} \sum_{\mathbf{n}} \left\{ \bar{J}_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}) \psi_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}) + \bar{\psi}_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}) J_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}) \right\}, \quad (12)$$

где плотность частиц $\rho(t, \mathbf{r})$ и вектор плотности спина $\mathbf{S}(t, \mathbf{r})$ имеют вид

$$\rho(t, \mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{n}} \bar{\psi}_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}) \psi_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}), \quad (13)$$

$$\mathbf{S}(t, \mathbf{r}) = \sum_{\mathbf{n}} \bar{\psi}_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}) \mathbf{n} \psi_{\mathbf{n}}(t, \mathbf{r}). \quad (14)$$

Используя равенство

$$\begin{aligned} & -\int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \sum_{i,j=1}^3 \mathbf{S}^i(\mathbf{r}) \left(\nabla^i \nabla^j \frac{1}{R} \right) \mathbf{S}^j(\mathbf{r}') = \\ & = 4\pi \int d\mathbf{r} d\mathbf{r}' (\text{curl } \mathbf{S}(\mathbf{r})) \hat{\Delta}^{-1} (\text{curl } \mathbf{S}(\mathbf{r}')) + \\ & \quad + 4\pi \int d\mathbf{r} (\mathbf{S}(\mathbf{r}) \cdot \mathbf{S}(\mathbf{r})), \end{aligned}$$

где $\hat{\Delta}^{-1}$ – оператор, обратный оператору Лапласа, вклад действия, связанного со спин-спиновым взаимодействием, можно записать в виде $S_{\text{int}}^{(s)} = S_{\text{int}}^{(s1)} + S_{\text{int}}^{(s2)}$, где

$$S_{\text{int}}^{(s1)} = -4\pi\gamma \int dt d\mathbf{r} d\mathbf{r}' \left\{ \text{curl } \mathbf{S}(t, \mathbf{r}) \hat{\Delta}^{-1} \text{curl } \mathbf{S}(t, \mathbf{r}') \right\}, \quad (15)$$

$$S_{\text{int}}^{(s2)} = -4\pi\gamma \int dt d\mathbf{r} \left\{ \left(1 - \frac{2a_c}{3a_s} \right) (\mathbf{S}(t, \mathbf{r}) \cdot \mathbf{S}(t, \mathbf{r})) \right\}. \quad (16)$$

Используя преобразование Хаббарда–Стратоновича для части спин-спинового взаимодействия $S_{\text{int}}^{(s1)}$, можно записать производящий функционал $Z[J, \bar{J}]$ так, чтобы взаимодействие (15) осуществлялось путем обмена виртуальным магнитным полем $\mathbf{H} = \text{curl } \mathbf{A}$ с выбором калибровки векторного потенциала $\text{div } \mathbf{A} = 0$, что дает

$$\begin{aligned} Z[J, \bar{J}] &= \int D\psi D\bar{\psi} D\mathbf{A} \times \\ &\times \exp i \left(S_0 + S_{\text{int}}^{(c)} + S_{\text{int}}^{(s2)} + S_{\text{int}}^{(AS)} + S^{(\mathbf{A})} + S_J \right), \quad (17) \end{aligned}$$

где

$$S_{\text{int}}^{(AS)} = \int dt d^3r \left\{ \sqrt{2\gamma} (\mathbf{S} \cdot \mathbf{H}) \right\}, \quad (18)$$

$$S_{\text{int}}^{(\mathbf{A})} = \int dt d^3r \left\{ -\frac{1}{8\pi} \mathbf{H}^2 \right\}. \quad (19)$$

Приравнивая к нулю первую вариацию полного действия по полям $\psi, \bar{\psi}, \mathbf{A}$, получим уравнения Гросса–Питаевского в виде

$$(G_0^{-1} - g\rho) \psi_{\mathbf{n}} - (S+1) \sqrt{2\gamma} \sum_{\mathbf{n}_1} \langle \mathbf{n} | \mathbf{n}_1 \rangle (\mathbf{n}_1 \cdot \tilde{\mathbf{H}}) \psi_{\mathbf{n}_1} = 0, \quad (20)$$

$$\frac{1}{4\pi} \hat{\Delta} \mathbf{A} + \sqrt{2\gamma} \text{curl } \mathbf{S} = 0, \quad (21)$$

где $G_0^{-1} = i\partial_t + \mu + \frac{1}{2m_0} \hat{\Delta}$ и

$$\tilde{\mathbf{H}} = \mathbf{H} - \frac{8\pi(\gamma - \tilde{\gamma})}{\sqrt{2\gamma}} \mathbf{S}, \quad \tilde{\gamma} = \frac{2a_c}{3a_s} \gamma. \quad (22)$$

Из (21) в импульсном представлении получим

$$\mathbf{H}_{\mathbf{k}} = 4\pi\sqrt{2\gamma} [\mathbf{S}_{\mathbf{k}} - \mathbf{e}_{\mathbf{k}} (\mathbf{e}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{S}_{\mathbf{k}})], \quad (23)$$

где $\mathbf{e}_{\mathbf{k}} = \mathbf{k}/|\mathbf{k}|$.

В случае $\mathbf{k} \neq 0$ перейдем в уравнениях Гросса–Питаевского к импульсному представлению и подставим $\mathbf{H}_{\mathbf{k}}$ из уравнения (23) в уравнение (20). Получим с

$$\begin{aligned} & \left(i\partial_t + \mu - \frac{1}{2m} \mathbf{k}^2 - g\rho - \mathbf{k} \right) \psi_{\mathbf{n};\mathbf{k}} - \\ & - 8\pi(S+1) \sum_{\mathbf{n}_1} \langle \mathbf{n} | \mathbf{n}_1 \rangle [\tilde{\gamma} (\mathbf{n}_1 \cdot \mathbf{S}_{-\mathbf{k}}) - \\ & - \gamma (\mathbf{n}_1 \cdot \mathbf{e}_{\mathbf{k}}) (\mathbf{e}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{S}_{-\mathbf{k}})] \psi_{\mathbf{n}_1;\mathbf{k}} = 0. \quad (24) \end{aligned}$$

Поскольку конденсатное поле $\psi_{\mathbf{n}}$ однородно, для его определения в уравнениях (24), (23) необходимо перейти к пределу $\mathbf{k} \rightarrow 0$. Однако переход к $\mathbf{k} = 0$ в

этих уравнениях не является тривиальным, поскольку вектор $\mathbf{e}_\mathbf{k}$ не определен при $\mathbf{k} \rightarrow 0$. Доопределим вектор $\mathbf{e}_\mathbf{k}$ при $\mathbf{k} \rightarrow 0$, обозначив его \mathbf{e}_0 , так, чтобы $(\mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{H}_0) = 0$, где $\mathbf{H}_0 = \mathbf{H}_{\mathbf{k}=0}$, поскольку $(\mathbf{k} \cdot \mathbf{H}_\mathbf{k}) = 0$ для любого конечного \mathbf{k} . Если $\mathbf{H}_0 \neq 0$, то \mathbf{S}_0 , где $\mathbf{S}_0 = \mathbf{S}_{\mathbf{k}=0}$, должно быть параллельно \mathbf{H}_0 , а значит, должно выполняться также и равенство $(\mathbf{e}_0 \cdot \mathbf{S}_0) = 0$. Поэтому из (23) получаем, что при $\mathbf{k} = 0$ последнее слагаемое в левой части уравнения (24) обращается в нуль, и $\mathbf{H}_0 = 4\pi\sqrt{2\gamma}\mathbf{S}_0$.

Предполагаем, что поле конденсата Бозе–Эйнштейна (БЭК) пропорционально СКС $|\mathbf{n}_0\rangle$, совпадающему с состоянием $|-S\rangle$, и поле БЭК, удовлетворяющее уравнению (24) при $\mathbf{k} = 0$, имеет вид

$$\psi_{\mathbf{n}}^{(c)} = \sqrt{\rho^{(c)}} \langle \mathbf{n} | \mathbf{n}_0 \rangle, \quad (25)$$

где $\rho^{(c)}$ – плотность БЭК. Плотность спина, отвечающая БЭК, после подстановки (25) в (14) имеет вид

$$\mathbf{S}^{(c)} = -(S+1) \sum_{\mathbf{n}} \bar{\psi}_{\mathbf{n}}^{(c)} \mathbf{n} \psi_{\mathbf{n}}^{(c)} = \rho^{(c)} \langle \mathbf{n}_0 | \hat{\mathbf{s}} \mathbf{n}_0 \rangle = -S\rho^{(c)} \mathbf{n}_0. \quad (26)$$

Подставляя (26) в уравнение (24) и учитывая, что при $\mathbf{k} = 0$ последнее слагаемое в левой части уравнения (24) обращается в нуль, получаем уравнение для однородной перевальной части поля $\psi_{\mathbf{n}}$

$$\left(i\partial_t + \mu - (g - 8\pi\tilde{\gamma}S^2) \rho^{(c)} \right) \psi_{\mathbf{n}}^{(c)} = 0. \quad (27)$$

Требуя, кроме однородности, также и стационарности поля БЭК, получаем, что

$$\mu = g\rho^{(c)} - 8\pi\tilde{\gamma}S^2\rho^{(c)}. \quad (28)$$

Умножая уравнение Гросса–Питаевского (20) на $\bar{\psi}_{\mathbf{n}} \mathbf{n}$ и суммируя по \mathbf{n} , а также умножая уравнение, комплексно сопряженное уравнению (20), на $\mathbf{n} \psi_{\mathbf{n}}$ и также суммируя по \mathbf{n} , а затем вычитая полученные уравнения одно из другого, получим уравнение, описывающее динамику плотности спина и являющееся аналогом уравнения Ландау–Лифшица для Бозе газа частиц со спином, который находится в ферромагнитном состоянии

$$\dot{\mathbf{S}}^i + \frac{1}{2m} \sum_{j=1}^3 \nabla^j \Pi^{ij} + \sqrt{2\gamma} \left[\tilde{\mathbf{H}} \times \mathbf{S} \right]^i = 0, \quad (29)$$

где Π^{ij} – тензор потока спина

$$\Pi^{ij} = i(S+1) \sum_{\mathbf{n}} \left[\bar{\psi}_{\mathbf{n}} \mathbf{n}^i (\nabla^j \psi_{\mathbf{n}}) - (\nabla^j \bar{\psi}_{\mathbf{n}}) \mathbf{n}^i \psi_{\mathbf{n}} \right]. \quad (30)$$

Уравнения для нормальной $G_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}(k)$ и аномальной $F_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}(k)$ функций Грина надконденсатных частиц можно записать в виде

$$G_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}(k) = G_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}^{(MF)}(k) + \sum_{\mathbf{n}_3; \mathbf{n}_4} \left(G_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_3}^{(MF)}(k) \Sigma_{\mathbf{n}_3; \mathbf{n}_4}(k) G_{\mathbf{n}_4; \mathbf{n}_2}(k) + G_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_3}^{(MF)}(k) \Xi_{\mathbf{n}_3; \mathbf{n}_4} F_{\mathbf{n}_4; \mathbf{n}_2}(k) \right), \quad (31)$$

$$F_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}(k) = \sum_{\mathbf{n}_3; \mathbf{n}_4} \left[G_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_3}^{(MF)}(-k) \Sigma_{\mathbf{n}_3; \mathbf{n}_4}(k) F_{\mathbf{n}_4; \mathbf{n}_2}(k) + G_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_3}^{(MF)}(-k) \Xi_{\mathbf{n}_3; \mathbf{n}_4}(k) G_{\mathbf{n}_4; \mathbf{n}_2}(k) \right], \quad (32)$$

где $G_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}^{(MF)}(k) = (\omega - \frac{1}{2m} \mathbf{k}^2) \langle \mathbf{n}_1 | \mathbf{n}_2 \rangle$ – затравочная функция Грина, а нормальная $\Sigma_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}$ и аномальные $\Xi_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}$, $\bar{\Xi}_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}$ собственно энергетические части (СЭЧ) имеют вид $\Sigma_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}(k) = \Gamma_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}(\mathbf{k}) \bar{\psi}_{\mathbf{n}_1}^{(c)} \psi_{\mathbf{n}_2}^{(c)}$; $\Xi_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2} = \Gamma_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}(\mathbf{k}) \bar{\psi}_{\mathbf{n}_1}^{(c)} \bar{\psi}_{\mathbf{n}_2}^{(c)}$; $\bar{\Xi}_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2} = \Gamma_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}(\mathbf{k}) \psi_{\mathbf{n}_1}^{(c)} \psi_{\mathbf{n}_2}^{(c)}$, причем

$$\Gamma_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}(\mathbf{k}) = g - 8\pi\tilde{\gamma}(S+1)^2 (\mathbf{n}_1 \cdot \mathbf{n}_2) + 8\pi\gamma(S+1)^2 (\mathbf{e}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{n}_1) (\mathbf{e}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{n}_2). \quad (33)$$

Заметим, что часть СЭЧ $\Sigma_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}$ с нулевой передачей импульса включена в затравочную функцию Грина, обозначенную $G_{\mathbf{n}_1; \mathbf{n}_2}^{(MF)}(k)$. Введем с помощью верхних индексов обозначения для разных частей СЭЧ Σ и Ξ , связанных с разными частями взаимодействия между частицами. Так, $\Sigma^{(11)}$ и $\Xi^{(11)}$ означают те части СЭЧ, которые определяются бесспиновым взаимодействием или частью спин-спинового взаимодействия, пропорциональной z-компонентам векторов \mathbf{n}_1 и \mathbf{n}_2 , а именно, $(\mathbf{n}_1^{(z)} \cdot \mathbf{n}_2^{(z)})$ или $(\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(z)} \cdot \mathbf{n}_1^{(z)}) (\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(z)} \cdot \mathbf{n}_2^{(z)})$; $\Sigma^{(12)}$, $\Xi^{(12)}$, $\Sigma^{(21)}$, $\Xi^{(21)}$ означают части СЭЧ, которые определяются частью спин-спинового взаимодействия, пропорциональной $(\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(z)} \cdot \mathbf{n}_1^{(z)}) (\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(\pm)} \cdot \mathbf{n}_2^{(\mp)})$ или $(\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(\pm)} \cdot \mathbf{n}_1^{(\mp)}) (\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(z)} \cdot \mathbf{n}_2^{(z)})$; $\Sigma^{(22)}$ и $\Xi^{(22)}$ означают части СЭЧ, которые определяются частью спин-спинового взаимодействия, пропорциональной $(\mathbf{n}_1^{(\pm)} \cdot \mathbf{n}_2^{(\mp)})$ или $(\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(\pm)} \cdot \mathbf{n}_1^{(\mp)}) (\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(\mp)} \cdot \mathbf{n}_2^{(\pm)})$, где $\mathbf{e}_{\mathbf{k}}^{(\pm)} = (k^{(x)} \pm ik^{(y)}) / |\mathbf{k}|$, $\mathbf{n}^{(\pm)} = \mathbf{n}^{(x)} \pm i\mathbf{n}^{(y)}$. Решение уравнений (31), (32) для функций Грина надконденсатных частиц дает спектр элементарных возбуждений, который при \mathbf{n}_1 или \mathbf{n}_2 , равным \mathbf{n}_0 , имеет одну ветвь, и вид этого спектра при малых импульсах \mathbf{k} и частотах ω , таких что $\omega \ll 8\pi\tilde{\gamma}S$, представим в виде

$$\varepsilon(\mathbf{k}) = \sqrt{\frac{\Sigma^{(11)} (\Sigma^{(22)} + \Xi^{(22)}) - 2\Sigma^{(21)} (\Sigma^{(12)} + \Xi^{(12)})}{2m_0 \Xi^{(22)}}} |\mathbf{k}|. \quad (34)$$

Если же $8\pi\tilde{\gamma}S \ll \omega \ll \mu$, то

$$\varepsilon(\mathbf{k}) = \sqrt{\frac{\Sigma^{(11)} + \Sigma^{(22)} + \sqrt{(\Sigma^{(11)} - \Sigma^{(22)})^2 + 4\Sigma^{(12)}\Sigma^{(21)}}}{2m_0}} |\mathbf{k}|. \quad (35)$$

Соответствующие части СЭЧ, присутствующие в этих выражениях, имеют вид: $\Sigma^{(11)} = \Xi^{(11)} = \left[g + 8\pi S^2 \left(\gamma (\mathbf{e}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{n}_0)^2 - \tilde{\gamma} \right) \right] \rho^{(c)}$; $\Sigma^{(12)} = \Xi^{(12)} = -8\pi\gamma\frac{\sqrt{2}}{2} S^{3/2} (\mathbf{e}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{n}_0) e_{\mathbf{k}}^{(+)} \rho^{(c)}$; $\Sigma^{(21)} = \Xi^{(21)} = -8\pi\gamma\frac{\sqrt{2}}{2} S^{3/2} (\mathbf{e}_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{n}_0) e_{\mathbf{k}}^{(-)} \rho^{(c)}$; $\Sigma^{(22)} = 8\pi S \left[\frac{\gamma}{2} e_{\mathbf{k}}^{(+)} e_{\mathbf{k}}^{(-)} - \tilde{\gamma} \right] \rho^{(c)}$; $\Xi^{(22)} = 8\pi\gamma\frac{S}{2} e_{\mathbf{k}}^{(+)} e_{\mathbf{k}}^{(-)} \rho^{(c)}$. Однако, при $\mathbf{n}_1 \neq \mathbf{n}_0$ и $\mathbf{n}_2 \neq \mathbf{n}_0$ спектр элементарных возбуждений для малых \mathbf{k} и ω имеет две ветви, одна из которых представима в виде (34) и (35), а другая имеет вид $\varepsilon(\mathbf{k}) = \frac{1}{2m_0} \mathbf{k}^2$. Наличие подобной голдстоуновской моды в спиновом Бозе газе, наряду со звуковой, ранее было предсказано теоретически как в приближении среднего поля, так и в Беляевском подходе [19, 20], когда взаимодействие не имеет диполь-дипольной части, и подтверждено экспериментально [6]. В данной работе, в отличие, например, от работ [19, 20], появление моды с законом дисперсии, совпадающим со спектром свободных частиц, связано с исходно дальнедействующим, а не короткодействующим взаимодействием. Мода с законом дисперсии свободной частицы связана с флуктуациями спиновой плотности [21], существование которой согласуется с (29).

Полученные выше результаты, строго говоря, справедливы при выполнении условия (7), когда дальнедействующее взаимодействие достаточно учитывать только в первом порядке. Одновременный же учет как затравочного короткодействующего, так и затравочного спин-спинового взаимодействия во всех порядках теории возмущений (также в лестничном приближении) качественно не меняет вывод о ферромагнитной структуре основного состояния, но приводит к определенному соотношению между константами взаимодействия

$$1 + \left(g - \frac{1}{3} \gamma (S + 1)^2 \right) \left(\frac{m_0}{2\pi^2} \right) \frac{1}{a_s} > 0, \quad (36)$$

необходимому для устойчивости системы. В противном случае, у перенормированной вершины появляется полюс, величина которого максимальна в случае противоположно направленных спинов рассеивающихся частиц. Наличие этого полюса означает

неустойчивость системы, и переход ее в состояние с сильной корреляцией противоположно направленных спинов. Этот случай в данной работе не анализируется.

Работа ИЯП над проблемой, изученной в данной работе, была начата в Max Planck Institute for the Physics of Complex Systems (Dresden, Germany), где он работал по приглашению проф. П. Фулде и завершена в рамках гранта Российского фонда фундаментальных исследований # 19-02-00433 А.

1. L. Santos and T. Pfau, Phys. Rev. Lett. **96**, 190404 (2006).
2. Y. Kawaguchi and M. Ueda, Phys. Rep. **520**(5), 253 (2012).
3. D. M. Stamper-Kurn and M. Ueda, Rev. Mod. Phys. **85**, 1191 (2013).
4. V. I. Yukalov, Laser Phys. **2**, 053001 (2018).
5. G. E. Marti and D. M. Stamper-Kurn, arXiv:1511.01575v1 [cond-mat.quant-gas], 5 Nov. 2015.
6. G. E. Marti, A. MacRae, R. Olf, S. Lourette, F. Fang, and D. M. Stamper-Kurn, Phys. Rev. Lett. **113**, 155302 (2014).
7. F. Fang, R. Olf, Sh. Wu, H. Kadau, and D. M. Stamper-Kurn, Phys. Rev. Lett. **116**, 095301 (2016).
8. B. Naylor, M. Brewczyk, M. Gajda, O. Gorceix, E. Maréchal, L. Vernac, and B. Laburte-Tolra, Phys. Rev. Lett. **117**, 185302 (2016).
9. G. Frapolli, T. Zibold, A. Invernizzi, K. Jiménez-García, J. Dalibard, and F. Gerbier, Phys. Rev. Lett. **119**, 050404 (2017).
10. J. M. Radcliffe, J. Phys. A: Gen. Phys. **4**, 313 (1971).
11. E. H. Lieb, Commun. Math. Phys. **31**, 327 (1973).
12. A. Perelomov, *Generalized Coherent States and Their Applications*, Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, N.Y., London, Paris, Tokyo (1986).
13. F. D. M. Haldane, Phys. Lett. A **93**, 464 (1982).
14. P. Weigman, Phys. Rev. Lett. **60**, 821 (1988).
15. K. Kladko, P. Fulde, and D. A. Garanin, EPL **46**(4), 425 (1999).
16. V. I. Belinicher and J. da Providencia, JETP Lett. **72**(10), 521 (2000).
17. E. Fradkin and M. Stone, Phys. Rev. B **38**(10), 7215 (1988).
18. E. Fradkin, *Field Theories of Condensed Matter Physics*, Cambridge University Press, N.Y. (2013).
19. H. Watanabe and H. Murayama, Phys. Rev. Lett. **108**, 251602 (2012).
20. N. Th. Phuc, Y. Kawaguchi, and M. Ueda, Anals of Physics **328**, 158 (2013).
21. T. L-Ho, Phys. Rev. Lett. **81**, 742 (1998).

Восстановление гидростатическим давлением металлического состояния в квазидвумерном органическом проводнике κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl

Р. Б. Любовский⁺, С. И. Песочкий⁺¹⁾, В. Н. Зверев*, Е. И. Жилыева⁺, С. А. Торунова⁺, Р. Н. Любовская⁺

⁺Институт проблем химической физики РАН, 142432 Черноголовка, Россия

*Институт физики твердого тела РАН, 142432 Черноголовка, Россия

Поступила в редакцию 22 сентября 2020 г.

После переработки 2 октября 2020 г.

Принята к публикации 2 октября 2020 г.

При охлаждении ниже 30 К квазидвумерный органический металл κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl, находящийся при гелиевых температурах в состоянии квантовой спиновой жидкости, испытывает переход в состояние моттовского диэлектрика. Приложение гидростатического давления $p = 0.7$ кбар стабилизирует металлическое состояние и позволяет провести исследование поведения межслоевого магнитосопротивления при гелиевых температурах. Полевая зависимость магнитосопротивления показывает неограниченный рост по степенному закону и может свидетельствовать в пользу включения поляронного механизма в межслоевой транспорт. Спектр обнаруженных осцилляций магнитосопротивления соответствует поверхности Ферми, характерной для проводящих слоев со структурой κ -типа.

DOI: 10.31857/S1234567820210089

Теоретическое предсказание начала 1970-х гг. о существовании в твердом теле нового состояния “квантовые спиновые жидкости” [1] нашло реальное экспериментальное подтверждение спустя 40 лет при исследовании синтетического минерала гербертсмитита [2], способного проявлять свойства, предсказанные для спиновой жидкости. В этом соединении не обнаружили ни дальнего магнитного порядка, ни структур типа спинового стекла, вплоть до сверхнизких температур 50 мК. Обладая специфической фрустрированной решеткой, такие материалы, содержащие треугольные мотивы с треугольниками, в вершинах которых находятся магнитные атомы, не допускают установления дальнего порядка. За счет квантовых флуктуаций и сильных корреляций между спинами фрустрированные магнетики остаются разупорядоченными даже вблизи абсолютного нуля [3–6].

Органические низкоразмерные проводники представляют собой большой класс соединений, обладающих набором необычных состояний и разнообразием фазовых переходов [7, 8]. Современная синтетическая химия позволяет получать органические проводники (металлы) с сильно коррелированными электронными системами. В соответствии с теоретическими предсказаниями для таких материалов ста-

новятся важными квантовые флуктуации при очень низких температурах, которые могут приводить к появлению состояний “квантовых спиновых жидкостей” и проявляться в разных физических свойствах [9, 10].

В настоящее время существование состояния “спиновой жидкости” установлено в ряде органических металлов на основе бис(этилендитио)тетрагидрофульвалена (ET), для которых характерен фазовый переход в моттовский изолятор [11, 12]. В изоструктурных квазидвумерных органических металлах κ -(ET)₂Hg(SCN)₂X (X = Cl, Br) при понижении температуры фазовые переходы наблюдаются при температурах 30 и 80 К, соответственно. В этих соединениях проводящие органические слои состоят из димеров молекул ET и чередуются с непроводящими слоями из неорганических анионов Hg(SCN)₂X. Димеры молекул ET в проводящих слоях почти перпендикулярны друг другу (κ -тип упаковки) и связаны большим числом укороченных S...S связей [13, 14].

В предлагаемой работе впервые представлены результаты экспериментального исследования электронной системы металлического состояния в сильно фрустрированном квазидвумерном органическом проводнике κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl методом анализа поведения магнитосопротивления. При температуре выше 30 К это соединение ведет себя как металл с на-

¹⁾e-mail: pesot@icp.ac.ru

половину заполненной зоной с сильными электрон-электронными корреляциями. В области $T = 30$ К в соединении наблюдается переход металл-изолятор и происходит диспропорционирование заряда внутри димеров из молекул ET, что приводит к установлению дальнего порядка. Однако при понижении температуры ниже 15 К дальний порядок полностью исчезает, и система переходит в состояние квантовой спиновой жидкости [15]. Органические проводники на основе ET являются довольно пластичными материалами, и приложение высоких давлений может существенно менять зону проводимости и влиять на их физические свойства [7, 8]. Приложение сравнительно небольшого внешнего давления позволило стабилизировать металлическое состояние вплоть до самых низких температур и проанализировать поведение магнитосопротивления в указанном проводнике.

Для исследования были выбраны монокристаллы соединения κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl в форме неправильных параллелепипедов со средними размерами $(1 \times 0.3 \times 0.02)$ мм³. Проводящие слои располагаются перпендикулярно короткому размеру кристалла, в этом же направлении направлялся переменный измерительный ток и измерялось межслоевое сопротивление. Магнитосопротивление изучалось в стационарном магнитном поле величиной до 16.5 Тл. Направление поля всегда совпадало с направлением измерительного тока. Таким образом, изучалось продольное межслоевое магнитосопротивление. Для создания давления использовалась камера высокого давления с гидрофобной кремнеорганической жидкостью (ГКЖ) в качестве передающей среды.

На рисунке 1 представлены температурные зависимости относительного межслоевого сопротивления κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl при разных давлениях. При нормальном давлении образец демонстрирует металлическое поведение межслоевого сопротивления от комнатной температуры до $T \approx 30$ К. Ниже этой температуры наблюдается достаточно резкий переход металл-диэлектрик. Давление $p \approx 0.4$ кбар сдвигает переход металл-диэлектрик на несколько градусов в сторону низких температур. Уже давление $p \approx 0.7$ кбар полностью подавляет переход и переводит образец в металлическое состояние, которое сохраняется вплоть до самых низких температур. Приведенные результаты находятся в хорошем согласии с опубликованной ранее фазовой T - p диаграммой этого соединения [16]. Следует отметить, что небольшая немонотонность поведения межслоевого сопротивления при $p \approx 0.7$ кбар при низких температурах свидетельствует о близости фазового перехода при этом давлении.

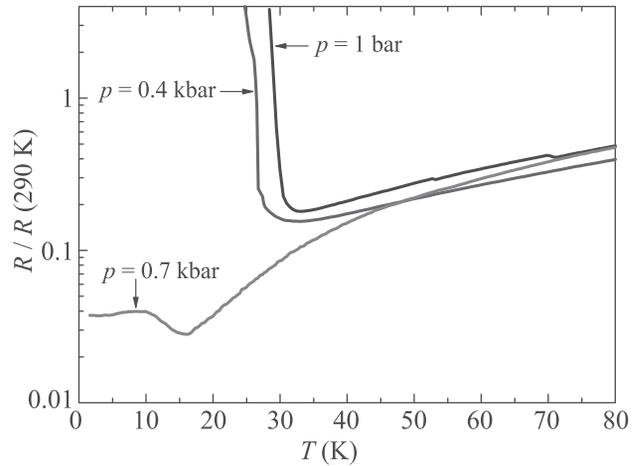


Рис. 1. (Цветной онлайн) Температурные зависимости относительного межслоевого сопротивления в κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl при различных давлениях

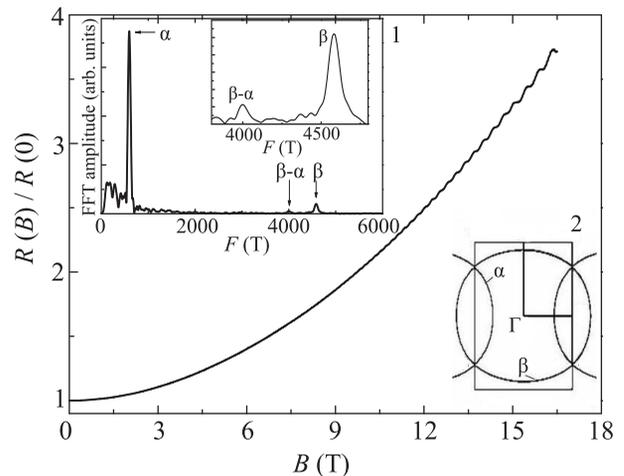


Рис. 2. Полевая зависимость межслоевого продольного магнитосопротивления в κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl при $T = 0.47$ К и $p = 0.7$ кбар. На вставке 1: Фурье-спектр осцилляций магнитосопротивления. На вставке 2: схематическое изображение поверхности Ферми в двумерных металлах κ -типа

На рисунке 2 приведена зависимость относительного продольного межслоевого сопротивления в κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl от магнитного поля. В поле $B \approx 16$ Тл сопротивление растет почти в четыре раза и хорошо описывается соотношением $R(B)/R(0) = a + bB^n$, где $n = 1.9$ во всем интервале полей без каких-либо признаков насыщения в максимальных полях. Такое поведение не характерно для большинства квазидвумерных органических металлов [17]. Одним из возможных механизмов такого поведения может быть формирование поляронов вокруг локализованных магнитным полем электронов в проводя-

ских слоях. Нарастание поля увеличивает степень локализации и, соответственно, увеличивает величину кулоновского барьера, который должен преодолеть электрон для перехода на соседний слой [18]. Начиная с магнитных полей $B \sim 10$ Тл на полевой зависимости магнитосопротивления (рис. 2) наблюдаются осцилляции Шубникова–де Гааза, которые подтверждают металлическое состояние электронной системы при низких температурах. Спектр таких осцилляций представлен на рис. 2 (вставка 1). Принимая во внимание κ -тип упаковки молекул ET в проводящих слоях κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl [14], можно ожидать обычную для этого типа форму поверхности Ферми [19] при низких температурах. Схематически она изображена на вставке 2 к рис. 2. Действительно, Фурье-спектр содержит две хорошо выраженные частоты $F_\alpha \approx 600$ Тл и $F_\beta \approx 4600$ Тл, соответствующие α и β орбитам, охватывающим 13 и 100 % площади первой зоны Бриллюэна, соответственно. Циклотронные массы, связанные с этими частотами и вычисленные из температурных зависимостей амплитуды осцилляций, составляют: $m_\alpha = (2.8 \pm 0.1)m_0$ и $m_\beta = (5.2 \pm 0.2)m_0$, где m_0 – масса свободного электрона. Существование α и β частот обусловлено возникновением малой щели в точках пересечения зоны Бриллюэна с исходной поверхностью Ферми, охватывающей 100 % площади этой зоны (два электрона на элементарную ячейку). В результате образуется замкнутая дырочная α -орбита и два листа открытой электронной орбиты. Магнитный пробой и, как следствие, переход электрона с α -орбиты на открытые участки формируют замкнутую магнитопробойную β -орбиту. Помимо фундаментальных частот, спектр содержит слабо выраженную комбинационную частоту $F_{\beta-\alpha} = F_\beta - F_\alpha \approx 4000$ Тл. Эта частота не имеет разрешенной замкнутой орбиты и вызвана эффектом квантовой интерференции [19], что подтверждает связанная с ней величина циклотронной массы: $m_{\beta-\alpha} \approx (2.5 \pm 0.3)m_0 \sim m_\beta - m_\alpha$.

Таким образом, приложение внешнего гидростатического давления всего $p = 0.7$ кбар подавляет диэлектрический переход в квазидвумерном органическом металле κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl и восстанавливает металлическую электронную структуру катионных слоев с поверхностью Ферми, характерной для упаковки κ -типа. Рост полевой зависимости магнитосопротивления по степенному закону может свидетельствовать о включении поляронного механизма в межслоевой транспорт.

Работа выполнена по теме Государственного задания, # гос. регистрации АААА-А19-119092390079-8 (синтез образцов) и в рамках проектов Россий-

ского фонда фундаментальных исследований # 18-02-00308 и 18-02-00280 (физические исследования).

1. P. W. Anderson, Mater. Res. Bull. **8**, 153 (1973).
2. T.-H. Han, J. S. Helton, Sh. Chu, D. G. Nocera, J. A. Rodriguez-Rivera, C. Broholm, and Y. S. Lee, Nature **492**, 406 (2012).
3. J. S. Helton, K. Matan, M. P. Shores, E. A. Nytko, B. M. Bartlett, Y. Yoshida, Y. Takano, A. Suslov, Y. Qiu, J.-H. Chung, D. G. Nocera, and Y. S. Lee, Phys. Rev. Lett. **98**, 107204 (2007).
4. P. Mendels and F. Bert, J. Phys. Soc. Jpn. **79**, 011001 (2010).
5. M. A. de Vries, K. V. Kamenev, W. A. Kockelmann, J. Sanchez-Benitez, and A. Harrison, Phys. Rev. Lett. **100**, 157205 (2008).
6. J. S. Helton, K. Matan, M. P. Shores, E. A. Nytko, B. M. Bartlett, Y. Qiu, D. G. Nocera, and Y. S. Lee, Phys. Rev. Lett. **104**, 147201 (2010).
7. J. M. Williams, J. R. Ferraro, R. J. Thorn, K. D. Carlson, U. Geiser, H. H. Wang, A. M. Kini, and M. H. Whangbo, *Organic Superconductors (Including Fullerenes) Synthesis, Structure, Properties and Theories*, Prentice Hall, Englewood Cliffs, NJ (1992).
8. T. Ishiguro, K. Yamaji, and G. Saito, *Organic Superconductors*, Springer, Berlin (1998).
9. L. Balents, Nature **464**, 199 (2010).
10. B. J. Powell and R. H. McKenzie, Rep. Prog. Phys. **74**, 056501 (2011).
11. K. Shimizu, K. Miyagawa, M. Kanoda, M. Maesato, and G. Saito, Phys. Rev. Lett. **91**, 107001 (2003).
12. N. Hassan, S. Cunningham, M. Mourigal, E. I. Zhilyaeva, S. A. Torunova, R. N. Lyubovskaya, J. A. Schlueter, and N. Drichko, Science **360**, 1101 (2018).
13. R. B. Lyubovskii, R. N. Lyubovskaya, and O. A. Dyachenko, J. Phys. France **6**, 1609 (1996).
14. N. Drichko, R. Beyer, E. Rose, M. Dressel, A. Schlueter, S. A. Turunova, E. I. Zhilyaeva, and R. N. Lyubovskaya, Phys. Rev. B **89**, 075133 (2014).
15. N. M. Hassan, K. Thirunavukkuarasu, Z. Lu, D. Smirnov, E. I. Zhilyaeva, S. Turunova, R. N. Lyubovskaya, and N. Drichko, npj Quantum Mater. **5**, 15 (2020).
16. A. Lohle, E. Rose, S. Singh, R. Bayer, E. Tatra, T. Ivek, E. I. Zhilyaeva, R. N. Lyubovskaya, and M. Dressel, J. Phys. Condens. Matter **29**, 055601 (2017).
17. P. D. Grigoriev, Phys. Rev. B **88**, 054415 (2013).
18. P. D. Grigoriev, Physica B **407**, 1932 (2012).
19. M. V. Kartsovnik, Chem. Rev. **104**, 5737 (2004).

Оптимизация спектра нормальных частот линейных ионных кристаллов в ловушках Пауля для ЕИТ-охлаждения с использованием оптической решетки

Л. А. Акопян¹⁾, И. В. Заливако*, К. Е. Лахманский⁺, К. Ю. Хабарова*⁺, Н. Н. Колачевский*⁺

⁺Российский квантовый центр, 121205 Москва, Россия

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

Поступила в редакцию 29 сентября 2020 г.

После переработки 3 октября 2020 г.

Принята к публикации 3 октября 2020 г.

Ионы в радиочастотных ловушках находят широкое применение в различных областях прикладной и фундаментальной физики, таких как метрология и квантовые вычисления. Одной из важных задач, необходимых для проведения современных экспериментов, является глубокое охлаждение ионных кристаллов. В работе представлены результаты теоретических исследований по увеличению эффективности глубокого охлаждения линейных ионных кристаллов методом электромагнитно-индуцированной прозрачности (ЕИТ-охлаждения) путем наложения на радиочастотную ловушку оптической решетки. Показано, что данный метод позволяет сузить частотный диапазон, занимаемый различными колебательными модами ионов, и увеличить их аксиальные частоты движения без нарушения линейной конфигурации кристалла. Так, для кристалла из 8 ионов в ловушке Пауля с секулярными частотами $\omega_z = 2\pi \times 100$ кГц и $\omega_r = 2\pi \times 650$ кГц, приложение оптической решетки позволяет сузить диапазон частот, занимаемый колебательными модами, в 2 раза. Исследована зависимость оптимальной мощности оптической решетки для сужения колебательного спектра от количества частиц в ловушке и ее параметров.

DOI: 10.31857/S1234567820210090

1. Введение. Успехи в области высокоточного управления одиночными квантовыми объектами, достигнутые в последние десятилетия, привели к бурному развитию таких областей науки, как квантовые вычисления [1–3], квантовые симуляции [4, 5], прецизионная метрология [6], проверка фундаментальных теорий [7]. Одним из интересных объектов для исследования в этих областях являются ионы, захваченные в радиочастотные ловушки. Наличие заряда и различные методы лазерного охлаждения позволяют захватить и локализовать эти частицы в областях пространства порядка длины волны света, возбуждающего оптические переходы в ионах. Возможность с высокой точностью контролировать электромагнитные поля в области локализации ионов, а также условия ультравысокого вакуума, в которых обычно располагаются ловушки, обеспечивают отсутствие возмущений их энергетической структуры и высокое время когерентности квантовых состояний [8]. В то же время высокостабильные лазерные источники [9] позволяют прецизионным образом манипулировать квантовым состоянием ионов и пере-

путывать внутренние степени свободы частиц с их движением [10]. Последнее обстоятельство, а также тот факт, что несколько ионов, находящихся в общем потенциале ловушки и отталкивающихся друг от друга посредством силы Кулона, представляют собой систему связанных механических осцилляторов, позволяют эффективно перепутывать электронные квантовые состояния нескольких частиц. В этом случае обобщенные колебательные степени свободы выступают в качестве передатчика взаимодействия, а лазерные поля – перепутывают эти степени свободы с внутренними состояниями частиц. Кроме того, квантовые состояния ионов могут быть с высокой точностью инициализированы и считаны [11] при помощи методов оптической накачки и квантовых скачков. Таким образом, ионы в ловушках являются квантовыми системами, хорошо изолированными от внешней среды, с высокой достоверностью контроля, подготовки и считывания их квантовых состояний, а также с возможностью осуществлять их квантовое перепутывание. Этими факторами и обуславливается столь высокий интерес к ионам в перечисленных выше областях.

¹⁾e-mail: l.akopyan@rqc.ru

Одной из важных составляющих экспериментов с ионами является их лазерное охлаждение. Оно позволяет уменьшить область локализации частиц, подавить сдвиги энергетических уровней, вызванные эффектом Доплера, а также дефазировку квантовых состояний, связанную с фактором Дебая–Уоллера [12]. Охлаждение ионов обычно осуществляется в несколько этапов. Первым из них является доплеровское охлаждение [13]. Этот метод позволяет охладить частицы до так называемого доплеровского предела, который обычно составляет примерно 1 мК. Для многих экспериментов, например для задач метрологии, это обычно является достаточным, однако ряд приложений требует охлаждения нормальных мод движения ионов до основного колебательного состояния. В первую очередь, это необходимо для экспериментов по квантовой логике, так как перепутывание частиц производится при помощи этих мод и большое количество фононов в моде может приводить к уменьшению достоверности операций [14, 15]. Также охлаждение до основного состояния необходимо в ряде спектроскопических и метрологических экспериментов, где считывание состояния производится посредством вспомогательного иона другого элемента [12] путем перепутывания их квантовых состояний.

Существует несколько методов глубокого охлаждения. Наиболее известным среди них является метод охлаждения на боковых колебательных частотах [16]. Он подразумевает возможность возбуждения в ионе спектрально узкого перехода, позволяющего отбирать при этом когерентным образом по одному или нескольким фононам из той или иной моды колебаний. Данный метод является эффективным, однако обладает рядом недостатков. Во-первых, он требует возбуждения некоторого узкого оптического или рамановского перехода, что чаще всего подразумевает необходимость в специализированной лазерной системе. Во-вторых, этот лазер должен с одной стороны импульсно и с другой стороны в когерентном режиме возбуждать нужный переход, в результате чего требуется соблюдать правильные длительности и интенсивности импульсов. Но главным недостатком метода является возможность охлаждать в каждый момент времени только одну колебательную моду. Альтернативным подходом является использование эффекта электромагнитноиндуцированной прозрачности (*Electromagnetically induced transparency* – EIT) [17–19]. Для его реализации в энергетической системе уровней частицы должна присутствовать лямбда-схема. Если приложить к иону оптические поля, близкие по частоте к переходам лямбда-схемы, и правильно подобрать их интенсивности, отстройки и по-

ляризации, можно добиться эффективного изменения профиля поглощения ионом излучения. В частности, можно добиться того [20], что ион будет эффективно поглощать фотоны на частотах, близких к красным колебательным боковым полосам [21], и не поглощать на несущей частоте перехода и синих боковых полосах. Это приведет к быстрому охлаждению колебательных мод в некотором диапазоне частот до уровня, близкого к основному колебательному состоянию. При этом для реализации данного подхода обычно можно использовать те же лазерные системы, что и для доплеровского охлаждения. Также отсутствует необходимость в формировании импульсов, а охлаждению подлежит сразу несколько мод, частоты которых находятся в некотором спектральном диапазоне, что особенно важно при работе с большими ионными кристаллами. Данный метод был успешно применен для глубокого охлаждения ионов Ca^+ [22] и Yb^+ [23].

Несмотря на все преимущества метода EIT-охлаждения, у него есть несколько ограничений. Во-первых, охлаждаемые частицы должны обладать специфической структурой энергетических уровней. Во-вторых, как и для метода охлаждения на боковых частотах, требуется реализация режима Лэмба–Дике, когда область локализации иона перед глубоким охлаждением не превосходит длину волны используемого излучения. И, в-третьих, эффективность охлаждения сильно связана с диапазоном частот мод, которые необходимо охладить. Таким образом, чем в меньшем диапазоне частот сосредоточены охлаждаемые моды, тем более глубоким будет охлаждение. В случае линейных ионных кристаллов моды обычно располагаются в достаточно широком спектральном диапазоне, а частоты аксиальных и радиальных мод разделены большим промежутком, что не позволяет эффективно охладить все моды.

В данной работе мы исследуем возможность использования комбинированного радиочастотно-оптического удержания ионов для повышения эффективности EIT-охлаждения. В частности, рассматривается изменение спектра нормальных мод колебаний линейных кристаллов при приложении вдоль оси ловушки оптической решетки. Под оптической решеткой здесь понимается стоячая волна, сформированная двумя встречными когерентными лазерными пучками, распространяющимися вдоль оси ловушки. Регулирование мощности решетки позволяет манипулировать частотами нормальных мод колебаний ионного кристалла [24]. Так, при определенных мощностях решетки можно добиться уменьшения разброса мод по частоте. Поскольку эф-

фективность ЕИТ-метода повышается с уменьшением диапазона частот, наложение оптической решетки позволит достигнуть более глубокого охлаждения. Нами изучена зависимость оптимальной мощности решетки, при которой разброс нормальных мод по частотам минимален, и достижимого диапазона частот нормальных мод от параметров ловушки и числа ионов для линейного кулоновского кристалла. Параметры оптимизировались для охлаждения ионов $^{171}\text{Yb}^+$, как одного из наиболее распространенных элементов в области квантовых вычислений и метрологии [25–27], где рассматриваемый метод является наиболее востребованным.

2. Колебательный спектр ионов в комбинированной ловушке. Линейные ловушки Пауля удерживают ионы при помощи комбинации постоянных и переменных электрических полей [21]. Движение ионов в них можно приближенно рассматривать как движение в гармоническом псевдопотенциале, кривизна которого в направлении вдоль оси ловушки значительно меньше, чем перпендикулярно ей. Секулярные частоты колебаний вдоль оси ω_z и перпендикулярно ей ω_r полностью характеризуют псевдопотенциал. Секулярные частоты зависят от массы и заряда захваченных частиц, геометрических параметров ловушки и напряжений, подаваемых на ее электроды.

При охлаждении ионов в ловушке, когда их средняя кинетическая энергия становится меньше средней потенциальной энергии их взаимодействия, они локализируются и формируют так называемые ионные (кулоновские) кристаллы [28]. В случае, если отношение силы удержания ловушки вдоль оси и перпендикулярно ей удовлетворяет условию [29]

$$\frac{1}{\alpha} \equiv \left(\frac{\omega_r}{\omega_z} \right)^2 \geq \frac{N^{1.73}}{2.53}, \quad (1)$$

ионный кристалл будет иметь вид линейной цепочки вдоль оси ловушки. Здесь N – количество ионов в ловушке. Именно такой вид кристаллов и будет рассматриваться далее в данной работе, так как именно они обычно применяются на практике для задач спектроскопии и квантовой логики. Малые колебания ионов вблизи положения равновесия в кристалле могут быть представлены как суперпозиция колебаний независимых гармонических осцилляторов, называемых нормальными модами. При наложении на кристалл в ловушке оптической решетки на каждый ион начинает действовать дополнительная пондеромоторная сила, обусловленная динамическим эффектом Штарка. Это приводит к изменению колебательного спектра и положений равнове-

сия частиц, что может быть использовано, например, для более эффективного охлаждения. Полный потенциал взаимодействия ионов с внешним полем в псевдопотенциальном приближении запишется следующим образом (оптическая решетка представлена как два встречных гауссовых лазерных пучка, распространяющихся вдоль оси ловушки и сфокусированных в ее центре):

$$V = \sum_{i=1}^N \frac{m}{2} [\omega_{xy}^2 x_i^2 + \omega_{xy}^2 y_i^2 + \omega_z^2 z_i^2] + \frac{e^2}{8\pi\epsilon_0} \sum_{i \neq j}^N \frac{1}{d_{ij}} - \frac{4P\eta\alpha_e}{\pi w_0^2} \sum_{i=1}^N \frac{1}{1 + \frac{z_i^2}{z_R^2}} \exp\left(-\frac{2r_i^2}{w_0^2(1 + \frac{z_i^2}{z_R^2})}\right) \cos^2 k z_i, \quad (2)$$

где m, N – масса и полное число ионов, $d_{ij} = \sqrt{(x_i - x_j)^2 + (y_i - y_j)^2 + (z_i - z_j)^2}$ – расстояние между ионами i, j , $\omega_{xy} \equiv \omega_r$ и ω_z – радиальная и аксиальная секулярные частоты колебаний ионов в ловушке Пауля, e – элементарный заряд, η – волновое сопротивление вакуума, α_e – поляризуемость иона, λ_L – длина волны и $k = \frac{2\pi}{\lambda_L}$ – волновой вектор лазера решетки, w_0 – ширина пучка решетки, $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda_L}$ – длина Рэлея, P – оптическая мощность в одном из двух пучков, образующих решетку, $r^2 = x^2 + y^2$ – расстояние от оси ловушки до иона. Первый член в этом выражении соответствует энергии ионов в поле ловушки Пауля, второй соответствует их кулоновскому расталкиванию, а третий описывает взаимодействие с оптической решеткой. Удобной характеристикой описания оптической решетки является не зависящая от параметров эксперимента частота решетки $\nu_{\text{lat}} = \sqrt{\frac{2P\eta\alpha_e}{m\pi^3 w_0^2}} k$, физический смысл которой – частота аксиальных колебаний одиночного иона, которые он бы совершал, будучи захваченным только в решетку.

Нормальные моды кристалла могут быть найдены диагонализацией матрицы вторых производных потенциала (2), взятых при равновесных положениях ионов [30]. Эта матрица также называется гесссианом. Таким образом, для вычисления спектра колебательных мод кристалла сначала необходимо найти равновесные положения ионов, которые соответствуют координатам частиц, где первые производные потенциальной энергии обращаются в нуль. Однако численное решение данной нелинейной системы уравнений для большого количества ионов является трудоемким вычислительным процессом, поэтому для поиска положений равновесия ионов используется метод молекулярной динамики.

В данной работе моделирование осуществлено в пакете LIon [31], созданном для численной симуляции динамики частиц в радиочастотных ловушках. Нами был создан дополнительный модуль для данного пакета, задающий динамику частицы в комбинированном радиочастотно-оптическом потенциале. Для поиска положений равновесия численно симулируется процесс захвата и охлаждения ионов $^{171}\text{Yb}^+$, наблюдаемый в эксперименте. Для этого ионам сначала присваиваются случайные положения в ловушке и скорости, после чего происходит прямое интегрирование уравнений движения частиц в ловушке, к которым добавлено сильное затухание. Через некоторое время движения частиц полностью затухают, и полученные конечные значения их координат соответствуют положениям равновесия. После нахождения положений равновесия вычисляется матрица Гесса, диагонализацией которой находятся частоты нормальных мод колебаний ионов.

На рисунке 1 в качестве примера приведены результаты вычислений зависимости частоты нормальных мод колебаний линейного 8-ионного кристалла от частоты оптической решетки ν_{lat} для ионов иттербия $^{171}\text{Yb}^+$. Для удобства вторая горизонтальная шкала на графике показывает соответствующие мощности решетки. Здесь и в дальнейшем в расчетах использованы параметры ловушки, типичные для экспериментов по спектроскопии и квантовой логике, а также обеспечивающие выполнение условия (1). Секулярные частоты составили $\omega_z = 2\pi \times 100$ кГц и $\omega_r = 2\pi \times 650$ кГц, длина волны решетки $\lambda_L = 532$ нм, радиус перетяжки $w_0 = 50$ мкм. На данной длине волны возможно получение большой оптической мощности при помощи коммерчески доступных лазерных источников при относительно высоком значении поляризуемости основного состояния иона иттербия. Поляризуемость основного состояния иттербия на этой длине волны принята равной $\alpha_e = 100$ а.е. [32].

Как можно видеть из рис. 1, частоты радиальных мод слабо зависят от мощности оптической решетки, в то время как аксиальные моды при приложении оптического поля сгущаются и их частоты возрастают. Вертикальная прямая на рис. 1 соответствует оптимальной для ЕИТ-охлаждения при данных параметрах ловушки частоте решетки $\nu_o = 0.530$ МГц, при которой диапазон частот мод $\Delta\omega = 2\pi \times 224$ кГц принимает наименьшее значение.

3. Оптимизация параметров ловушки и решетки для ЕИТ-охлаждения. Была исследована зависимость оптимальных параметров решетки и достижимого сужения ширины спектра нормаль-

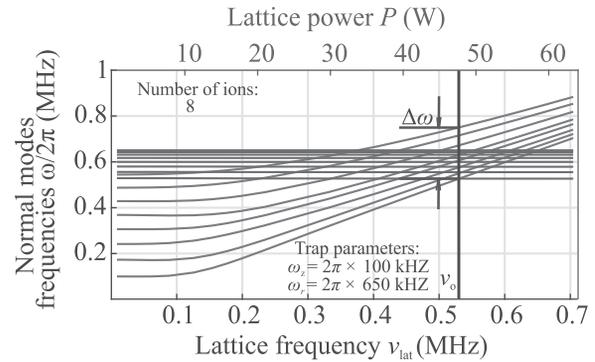


Рис. 1. (Цветной онлайн) Частоты аксиальных (синие кривые) и радиальных (красные кривые) нормальных мод колебаний 8-ионного линейного кристалла в зависимости от мощности приложенной оптической решетки. Частота оптической решетки – частота аксиальных колебаний иона, соответствующая колебаниям частицы только в оптическом потенциале. Параметры ловушки составили $\omega_z = 2\pi \times 100$ кГц и $\omega_r = 2\pi \times 650$ кГц. Вертикальная прямая показывает значение оптимальной частоты решетки $\nu_o = 0.530$ МГц, при которой разброс мод по частотам минимален и равен $\Delta\omega = 2\pi \times 224$ кГц

ных мод для осуществления ЕИТ-охлаждения от количества захваченных ионов и параметров ловушки Пауля. Оптимальные параметры решетки и соответствующие им разбросы частот мод в зависимости от отношения квадратов аксиальной и радиальной секулярных частот ловушки α приведены на рис. 2. Радиальная частота ω_r при этом оставалась постоянной, а аксиальная ω_z – варьировалась. Если менять параметр α путем варьирования ω_r вместо ω_z , качественный характер зависимости не изменится. Количество ионов, используемое при этой симуляции, составило $N = 6$. Полученные результаты показывают, что с ростом параметра α оптимальная частота решетки падает, приводя к более низким требуемым оптическим мощностям, однако достижимая ширина спектра нормальных мод растет, что уменьшает эффективность охлаждения. Таким образом, при планировании эксперимента по ЕИТ-охлаждению с использованием оптической решетки необходимо искать компромисс между располагаемой оптической мощностью и достигаемой эффективностью охлаждения.

Рисунок 3 содержит результаты исследования зависимости оптимизированных параметров решетки от длины ионного кристалла N . Из рисунка 3 видно, что с увеличением числа ионов оптимальная частота решетки ν_o уменьшается, однако, как и в случае с параметром α , минимальный диапазон частот мод $\Delta\omega$ растет и достигает $\Delta\omega = 2\pi \times 224$ кГц для кристалла

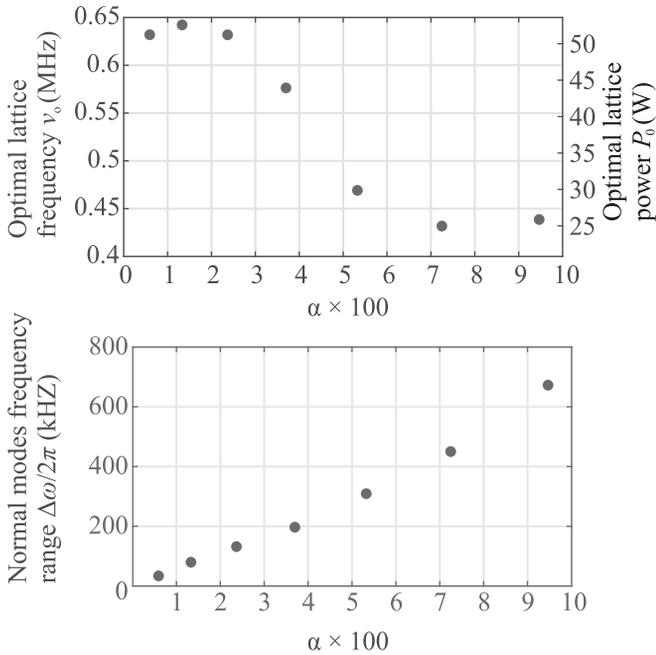


Рис. 2. (Цветной онлайн) Графики зависимости оптимальной частоты оптической решетки ν_0 (сверху) и диапазона частот нормальных мод $\Delta\omega$ при оптимальной частоте решетки (снизу) от параметра $\alpha = \frac{\xi_{\perp, \text{opt}}}{r_{\text{opt}}}$. Радиальная частота была фиксирована и составляла $\omega_r = 2\pi \times 650$ кГц, в то время как аксиальная частота ω_z варьировалась в пределах от $2\pi \times 50$ кГц до $2\pi \times 200$ кГц

из 8 ионов. Вкупе с данными из предыдущего графика можно сделать вывод, что ЕИТ-охлаждение с использованием оптической решетки может быть эффективно использовано для длинных ионных цепочек при условии использования достаточно низкого значения параметра α , что одновременно требуется для сохранения линейной конфигурации кристалла. Аномальное значение оптимальной частоты решетки ν_0 для кристалла из 6 ионов на рис. 3 (0.632 МГц вместо ожидаемых 0.57 МГц) не является вычислительной ошибкой, а связано с тем, что при данном наборе параметров системы (параметры ловушки и длина волны решетки) равновесные положения крайних ионов в цепочке располагаются слишком близко к пучностям решетки, что меняет динамику изменения конфигурации ионного кристалла при увеличении оптической мощности. Это приводит к изменению модового спектра кристалла при приложении решетки и изменению оптимальной мощности решетки. Небольшое изменение длины волны решетки устраняет это аномальное поведение мод.

4. Заключение. Исследована возможность увеличения эффективности ЕИТ-охлаждения линейных

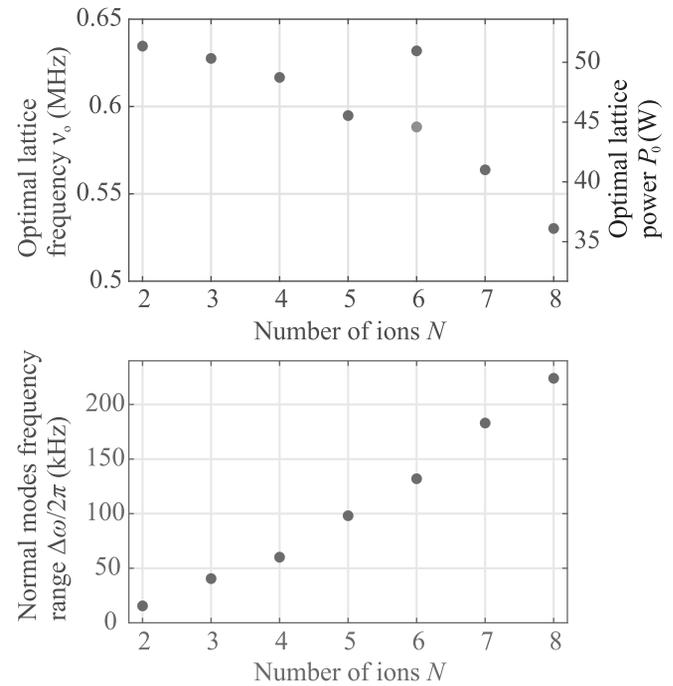


Рис. 3. (Цветной онлайн) Графики зависимости оптимальной частоты оптической решетки ν_0 (сверху) и диапазона частот нормальных мод при оптимальной частоте $\Delta\omega$ (снизу) от числа ионов N . Параметры ловушки составили $\omega_z = 2\pi \times 100$ кГц и $\omega_r = 2\pi \times 650$ кГц. Аномальное значение частоты ν_0 при $N = 6$ связано с совпадением равновесных положений комбинированной ловушки с пучностями оптической решетки. Данный эффект приводит к смещению оптимальной частоты решетки. Красной точкой показано значение частоты ν_0 при измененной длине волны лазера $\lambda_L = 500$ нм, когда этот эффект более не наблюдается

ионных кристаллов путем наложения на ловушку оптической решетки. Проведены численные симуляции колебательного спектра линейных цепочек из ионов $^{171}\text{Yb}^+$ при разном количестве частиц (вплоть до 8), а также параметрах ловушки и решетки. Показано, что при экспериментально достижимых оптических мощностях в решетке и параметрах ловушки возможно сужение диапазона частот, занимаемого нормальными модами, в несколько раз, что позволяет значительно увеличить эффективность охлаждения. При этом происходит увеличение аксиальных частот колебаний частиц до значений, соответствующих радиальным частотам, без выхода кристалла из линейной конфигурации, что особенно важно для длинных цепочек частиц (40–100), где низкие аксиальные частоты обычно не позволяют даже реализовать режим Лэмба–Дике. Это, а также тот факт, что мощность оптического поля, требуемая для сужения спектра колебательных мод, падает с ростом

длины кристалла, показывают, что ЕИТ-охлаждение с использованием комбинированных радиочастотно-оптических ловушек является перспективным инструментом для работы с большими линейными ионными кристаллами. Этот результат является важным для целого ряда задач, таких как масштабирование ионных квантовых вычислителей и создание многоионных оптических часов.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ в рамках научного проекта # 19-12-00274.

Мы также благодарим О.Ю.Лахманскую за полезные обсуждения.

1. C. D. Bruzewicz, J. Chiaverini, R. McConnell, and J. M. Sage, *Appl. Phys. Rev.* **6**, 021314 (2019).
2. M. Saffman, *National Science Review* **6**, 24 (2019).
3. F. Arute, K. Arya, R. Babbush et al. (Collaboration), *Nature* **574**, 505 (2019).
4. J. Zhang, G. Pagano, P. W. Hess, A. Kyprianidis, P. Becker, H. Kaplan, A. V. Gorshkov, Z. X. Gong, and C. Monroe, *Nature* **551**, 601 (2017).
5. H. Bernien, S. Schwartz, A. Keesling, H. Levine, A. Omran, H. Pichler, S. Choi, A. S. Zibrov, M. Endres, M. Greiner, V. Vuletic, and M. D. Lukin, *Nature* **551**, 579 (2017).
6. P. Micke, T. Leopold, S. A. King, E. Benkler, L. J. Spieß, L. Schmöger, M. Schwarz, J. R. Crespo López-Urrutia, and P. O. Schmidt, *Nature* **578**, 60 (2020).
7. T. Rosenband, D. B. Hume, P. O. Schmidt et al. (Collaboration), *Science* **319**, 1808 (2008).
8. P. Wang, C. Y. Luan, M. Qiao, M. Um, J. Zhang, Y. Wang, X. Yuan, M. Gu, J. Zhang, and K. Kim, **1**, 1 (2020).
9. J. M. Robinson, E. Oelker, W. R. Milner, W. Zhang, T. Legero, D. G. Matei, F. Riehle, U. Sterr, and J. Ye, *Optica* **6**, 240 (2019).
10. J. P. Gaebler, T. R. Tan, Y. Lin, Y. Wan, R. Bowler, A. C. Keith, S. Glancy, K. Coakley, E. Knill, D. Leibfried, and D. J. Wineland, *Phys. Rev. Lett.* **117**, 1 (2016).
11. T. P. Harty, D. T. Allcock, C. J. Ballance, L. Guidoni, H. A. Janacek, N. M. Linke, D. N. Stacey, and D. M. Lucas, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 2 (2014).
12. P. O. Schmidt, T. Rosenband, C. Langer, W. M. Itano, J. C. Bergquist, and D. J. Wineland, *Science (New York, N.Y.)* **309**, 749 (2005).
13. P. D. Lett, W. D. Phillips, S. L. Rolston, C. E. Tanner, R. N. Watts, and C. I. Westbrook, *J. Opt. Soc. Am. B* **6**, 2084 (1989).
14. J. I. Cirac and P. Zoller, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4091 (1995).
15. A. Sørensen and K. Mølmer, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1971 (1999).
16. C. Monroe, D. M. Meekhof, B. E. King, S. R. Jefferts, W. M. Itano, D. J. Wineland, and P. Gould, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 4011 (1995).
17. G. Morigi, J. Eschner, and C. H. Keitel, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 4458 (2000).
18. M. Roghani and H. Helm, *Phys. Rev. A* **77**, 43418 (2008).
19. I. Semerikov, I. Zalivako, A. Borisenko, K. Khabarova, and N. Kolachevsky, *Journal of Russian Laser Research* **39**, 568 (2018).
20. J. Evers and C. H. Keitel, *EPL (Europhysics Letters)* **68**, 370 (2004).
21. D. Leibfried, R. Blatt, C. Monroe, and D. Wineland, *Rev. Mod. Phys.* **75**, 281 (2003).
22. R. Lechner, C. Maier, C. Hempel, P. Jurcevic, B. P. Lanyon, T. Monz, M. Brownnutt, R. Blatt, and C. F. Roos, *Phys. Rev. A* **93**, 1 (2016).
23. L. Feng, W. Tan, A. De, A. Menon, A. Chu, G. Pagano, and C. Monroe, *Phys. Rev. Lett.* **125**, 053001 (2020).
24. T. Lauprêtre, R. B. Linnet, I. D. Leroux, H. Landa, A. Dantan, and M. Drewsen, *Phys. Rev. A* **99** (2019).
25. K. Wright, K. Beck, S. Debnath et al. (Collaboration), *Nature Commun.* **10**, 1 (2019).
26. Y. Wang, M. Um, J. Zhang, S. An, M. Lyu, J. N. Zhang, L. M. Duan, D. Yum, and K. Kim, *Nature Photon.* **11**, 646 (2017).
27. N. Huntemann, M. Okhapkin, B. Lipphardt, S. Weyers, C. Tamm, and E. Peik, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 090801 (2012).
28. R. C. Thompson, *Contemp. Phys.* **56**, 63 (2015).
29. D. G. Enzer, M. M. Schauer, J. J. Gomez, M. S. Gulley, M. H. Holzscheiter, P. G. Kwiat, S. K. Lamoreaux, C. G. Peterson, V. D. Sandberg, D. Tupa, A. G. White, R. J. Hughes, and D. F. James, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2466 (2000).
30. D. F. V. James, *Appl. Phys. B* **66**, 181 (1998).
31. E. Bentine, C. J. Foot, and D. Trypogeorgos, *Comput. Phys. Commun.* **253**, 107187 (2020).
32. A. Roy, S. De, B. Arora, and B. K. Sahoo, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **50**, 205201 (2017).

Комбинированная схема восстановления функции распределения частиц по размерам с использованием данных малоуглового рассеяния

В. В. Волков¹⁾, П. В. Конарев, А. Е. Крюкова

Институт кристаллографии им. А. В. Шубникова,
Федеральный научно-исследовательский центр “Кристаллография и фотоника” РАН, 119333 Москва, Россия

Поступила в редакцию 7 октября 2020 г.

После переработки 7 октября 2020 г.

Принята к публикации 7 октября 2020 г.

Для анализа полидисперсных систем в наноразмерном диапазоне существует ряд алгоритмов, позволяющих определять профиль распределения частиц по размерам из данных малоуглового рентгеновского и нейтронного рассеяния. Соответствующая задача наименьших квадратов плохо обусловлена, что может приводить к сильной зависимости решения от стартового приближения и параметров алгоритмов поиска. Процедура, основанная на решении системы линейных уравнений с регуляризацией, дает стабильное решение, но не свободное от артефактов. Решения, предлагаемые другими алгоритмами, которые ищут функцию распределения как в аналитическом виде, так и в виде непараметрической гистограммы, могут зависеть от параметров поиска и начального приближения. В работе предложена комбинированная схема использования этих алгоритмов, позволяющая повысить устойчивость решения и, как следствие, его надежность.

DOI: 10.31857/S1234567820210107

Введение. Свойства многих современных материалов определяются структурными особенностями в наноразмерном диапазоне, поэтому для их исследования часто применяют методы малоуглового рентгеновского и нейтронного рассеяния (МУРР и МУРН, соответственно), которые позволяют качественно и количественно исследовать строение вещества без специальной подготовки образцов в диапазоне разрешений от долей нанометра до нескольких микрон. Анализ таких систем представляет собой плохо обусловленную задачу, что может приводить к большим разбросам решений. Так, число обусловленности матрицы вторых производных минимизируемой целевой функции может достигать десятков и сотен миллионов, что приводит к сильной зависимости решения не только от ошибок в исходных данных, но и от реализации алгоритма поиска, и от величин стартовых значений параметров модели.

Для анализа полидисперсных систем по малоугловым данным существует ряд алгоритмов, среди которых можно выделить несколько основных:

(1) методы линейных наименьших квадратов, в том числе с регуляризацией решения по Тихонову (программа GNOM [1] из пакета ATSAS [2] и программа GIFT [3]);

(2) прямой поиск распределения частиц по размерам в виде гистограммы методами нелинейных наименьших квадратов (программа VOLDIS, неопубл.) и случайного поиска McSAS [4];

(3) постулирование вида распределения в аналитическом виде (например, нормального распределения или распределения Шульца [5]) и проведение приближения данных методами нелинейных наименьших квадратов (программа MIXTURE (и ее модифицированный вариант POLYMIX) [6] и программа SASFIT [7]).

Каждый из этих алгоритмов обладает своими преимуществами и недостатками, и использование только одного из них не всегда позволяет получать решения, свободные от артефактов. В данной работе нами предложена новая схема совместного использования алгоритмов, позволяющая повысить надежность восстановления функции распределения частиц по размерам. Работа схемы проиллюстрирована на примерах двухкомпонентных и трехкомпонентных систем полидисперсных сферических частиц с разнесенными и частично перекрывающимися распределениями компонент.

Алгоритмы восстановления функции распределения частиц по размерам по данным малоуглового рассеяния. Для вычисления функции распределения по размерам частиц в полидис-

¹⁾e-mail: volkicras@mail.ru

персных системах по данным интенсивности рассеяния $I(s)$, программы GNOM [1] и GIFT [3] решают интегральное уравнение

$$I(s) = \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} D_V(r) I_0(s, r) dr, \quad (1)$$

где $D_V(r)$ – искомая функция распределения, определенная в диапазоне размеров $[R_{\min}, R_{\max}]$, $I_0(s, r)$ – заданный форм-фактор частицы (в данной работе мы использовали сферы), $s = (4\pi/\lambda) \sin \theta$ – модуль вектор рассеяния, 2θ – угол рассеяния, λ – длина волны. Данное интегральное уравнение, представленное в конечных разностях в виде системы линейных уравнений с матрицей коэффициентов, составленной из интенсивностей рассеяния сферическими частицами, рассчитанными на экспериментальной сетке угловых отсчетов интенсивности и искусственной сетке радиусов от R_{\min} , (обычно от 1 Å) до предполагаемого максимального значения R_{\max} , представляет собой плохо обусловленную задачу. Для получения устойчивых решений, имеющих физический смысл, в программе GNOM применена регуляризация решения по Тихонову [8], т.е. минимизируется функционал, в который входит как квадрат невязки между экспериментальной и рассчитанной кривой рассеяния, так и квадрат нормы первой производной функции распределения, умноженный на параметр регуляризации и обеспечивающий гладкость контура [1]. Решение чувствительно к эффектам обрыва $I(s)$ и может содержать осцилляции, существенно искажающие форму распределения. Параметр регуляризации в данном подходе фактически представляет собой степень сглаживания решения, позволяющий повысить его устойчивость, но требует подбора области определения $[R_{\min}, R_{\max}]$ функции $D_V(r)$.

Два других алгоритма используют методы нелинейной минимизации, причем в одном случае функцию распределения непосредственно ищут в виде гистограммы (программы McSAS [4] и VOLDIS), в другом случае функция распределения задается в аналитическом виде (программа SASFIT [7]) или комбинации аналитических выражений (MIXTURE/POLYMIX [6]).

В последнем случае интенсивность рассеяния представляют в виде линейной комбинации вкладов рассеяния от K компонент, при этом каждая компонента есть система частиц заданной формы, распределение которых описывается одним аналитическим выражением с учетом, при необходимости, межчастичной интерференции:

$$I(s) = \sum_{k=1}^K v_k I_k(s), \quad (2)$$

где v_k – относительная объемная доля k -ого компонента с интенсивностью рассеяния $I_k(s)$, которая, в свою очередь, зависит от вида (объемной) функции распределения $D_{V_k}(r)$ и заданного квадрата форм-фактора частицы $I_{0_k}(s, r)$:

$$I_k(s) = \int_{R_{\min}}^{R_{\max}} D_{V_k}(r) I_{0_k}(s, r) dr, \quad (3)$$

где r – размер частицы. Тогда результирующее распределение есть линейная комбинация парциальных функций:

$$D_V(r) = \sum_{k=1}^K v_k D_{V_k}(r). \quad (4)$$

Решение задачи состоит в определении параметров аналитических распределений и их относительных вкладов в сумму (2) путем минимизации квадратичного отклонения теоретической интенсивности от экспериментальной.

В программе MIXTURE для поиска решения используется метод переменной метрики в варианте Бройдена–Флетчера–Голдфарба–Шанно [9] с простыми ограничениями на параметры, в программах POLYMIX и VOLDIS реализован модифицированный вариант алгоритма Левенберга–Марквардта [10], тогда как в программе McSAS применен относительно медленно сходящийся метод Монте-Карло. Использование стохастических методов, хотя и обладающих свойствами поиска глобального экстремума, в данном случае нам представляется необоснованным, так как нестабильность поиска непараметрической гистограммы распределения вызвана плохой обусловленностью задачи и ограниченностью точности машинных вычислений, а не ее неоднозначностью.

Сравнение эффективности восстановления функции распределения для двух и трехкомпонентных систем полидисперсных сферических частиц. В данной работе мы рассмотрели случаи двухкомпонентных и трехкомпонентных систем полидисперсных сферических частиц с разнесенными и частично перекрывающимися распределениями компонентов. Для этих систем были смоделированы наборы данных малоуглового рассеяния как без шума, так и с добавлением шума, подчиняющегося Пуассоновскому распределению. Структурные параметры систем приведены в табл. 1.

По незашумленным модельным данным все три алгоритма (программы GNOM, VOLDIS и

Таблица 1. Структурные параметры двух- и трехкомпонентных систем полидисперсных сферических частиц. R_i – средний радиус сфер i -компоненты, dR_i – ширина распределения i -компонента, v_i – объемная доля i -компоненты ($i = 1 \div 3$)

Номер системы	Компонент 1	Компонент 2	Компонент 3
1	$R_1 = 5.0 \text{ нм}$ $dR_1 = 1.5 \text{ нм}$ $v_1 = 0.70$	$R_2 = 12.0 \text{ нм}$ $dR_2 = 3.0 \text{ нм}$ $v_2 = 0.30$	—
2	$R_1 = 6.0 \text{ нм}$ $dR_1 = 4.0 \text{ нм}$ $v_1 = 0.10$	$R_2 = 11.0 \text{ нм}$ $dR_2 = 2.0 \text{ нм}$ $v_2 = 0.90$	—
3	$R_1 = 4.0 \text{ нм}$ $dR_1 = 0.7 \text{ нм}$ $v_1 = 0.20$	$R_2 = 15 \text{ нм}$ $dR_2 = 1.5 \text{ нм}$ $v_2 = 0.80$	—
4	$R_1 = 4.0 \text{ нм}$ $dR_1 = 0.5 \text{ нм}$ $v_1 = 0.70$	$R_2 = 8.0 \text{ нм}$ $dR_2 = 1.5 \text{ нм}$ $v_2 = 0.20$	$R_3 = 15.0 \text{ нм}$ $dR_3 = 3.0 \text{ нм}$ $v_3 = 0.10$
5	$R_1 = 3.0 \text{ нм}$ $dR_1 = 0.4 \text{ нм}$ $v_1 = 0.005$	$R_2 = 8.0 \text{ нм}$ $dR_2 = 2.0 \text{ нм}$ $v_2 = 0.078$	$R_3 = 22.0 \text{ нм}$ $dR_3 = 3.0 \text{ нм}$ $v_3 = 0.917$
6	$R_1 = 37.0 \text{ нм}$ $dR_1 = 7.0 \text{ нм}$ $v_1 = 0.01$	$R_2 = 65.0 \text{ нм}$ $dR_2 = 4.0 \text{ нм}$ $v_2 = 0.89$	$R_3 = 130.0 \text{ нм}$ $dR_3 = 5.5 \text{ нм}$ $v_3 = 0.10$

MIXTURE/POLYMIX) восстанавливают решение с удовлетворительной для практики точностью (относительная ошибка не превышает 0.1–0.2%, на графиках отклонение не видно, и поэтому рисунки мы не приводим). Естественно, по зашумленным кривым рассеяния, показанным на рис. 1–2, удастся найти только приближенное распределение. При этом форма функции распределения, восстанавливаемая программой GNOM (синие пунктирные кривые на рисунках), оказывается наиболее отличающейся от точного решения (сплошные красные линии на рисунках). Если положения пиков распределений определяются достаточно точно (отклонения не превышают 5%), то ширины распределений оказываются намного больше заданных при построении моделей. Кроме того, найденные распределения имеют артефакты в виде осцилляций из-за эффекта обрыва функции интенсивности рассеяния. Регуляризация, используемая в программе GNOM, хотя и позволяет находить достаточно гладкие решения (требование гладкости и приводит к уширению пиков) с малой амплитудой артефактов, тем не менее может неверно передавать форму распределения в области начальных (малых) размеров из-за чрезмерного ограничения первой производной по контуру.

Результаты программы непараметрического поиска гистограммы распределения VOLDIS для зашумленных данных (кривые на рисунках показаны

точками) также содержат отличия от точного решения (сплошные линии), причем особенно неустойчивыми также оказываются области малых размеров (особенно хорошо это видно на примере рис. 2(5)). Этот эффект связан с тем, что парциальные кривые рассеяния от частиц близких размеров очень похожи, и программа, увеличивая вклад частиц какого-либо радиуса, компенсирует чрезмерный рост интенсивности рассеяния уменьшением вклада от соседних частиц с близкими размерами. При малых же размерах сходство форм кривых рассеяния (например, по критерию корреляции) намного больше, чем в области больших размеров. Это связано с тем, что рассеяние от малоразмерных частиц в экспериментальной области углов представляет собой монотонные медленно спадающие функции, тогда как при больших размерах парциальные кривые содержат особенности в виде максимумов (по крайней мере, на производных), имеющих разные угловые положения.

Программа POLYMIX (аналогично MIXTURE) позволяет находить решения, практически совпадающие с точными во всех представленных случаях (сплошные красные кривые на рисунках, визуально не отличимые от точных контуров) при старте с приближений, близких к решениям, полученным программами GNOM и VOLDIS. Однако, решения могут содержать и значительные отличия, если стартовое приближение далеко от истинного. Как было показано ранее в работах [11, 12], диапазон области

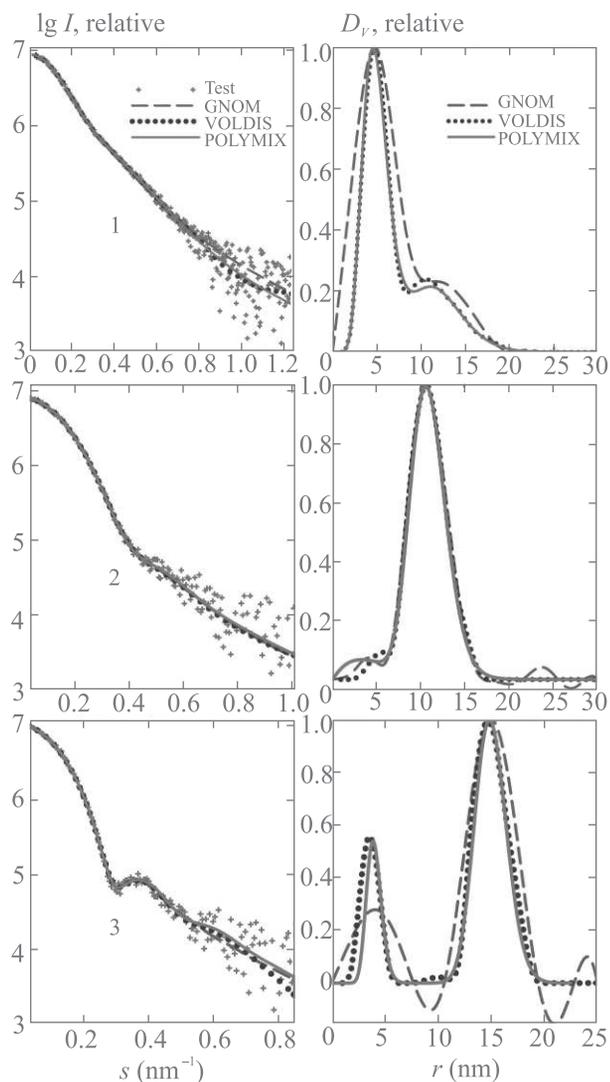


Рис. 1. (Цветной онлайн) Столбец слева: малоугловые данные от двухкомпонентной системы полидисперсных сферических частиц, номера строк соответствуют моделям 1–3 из табл. 1. Строки: крестики – зашумленные модельные данные, синяя пунктирная кривая – решение GNOM, черные точки – решение VOLDIS; сплошная красная кривая – решение POLYMIX, полученное с использованием стартовых параметров, оцененных по решениям GNOM и VOLDIS. Рассеяние от точной модели визуально совпадает с решением POLYMIX. Столбец справа: контуры полученных распределений по радиусам частиц, обозначения кривых те же

стартовых значений параметров распределений, с которых возможно восстановление правильного решения, зависит от многих факторов, в частности, от относительного вклада параметров компонентов смеси в общую кривую рассеяния и от уровня и вида шума в данных. Поэтому естественной кажется мысль ис-

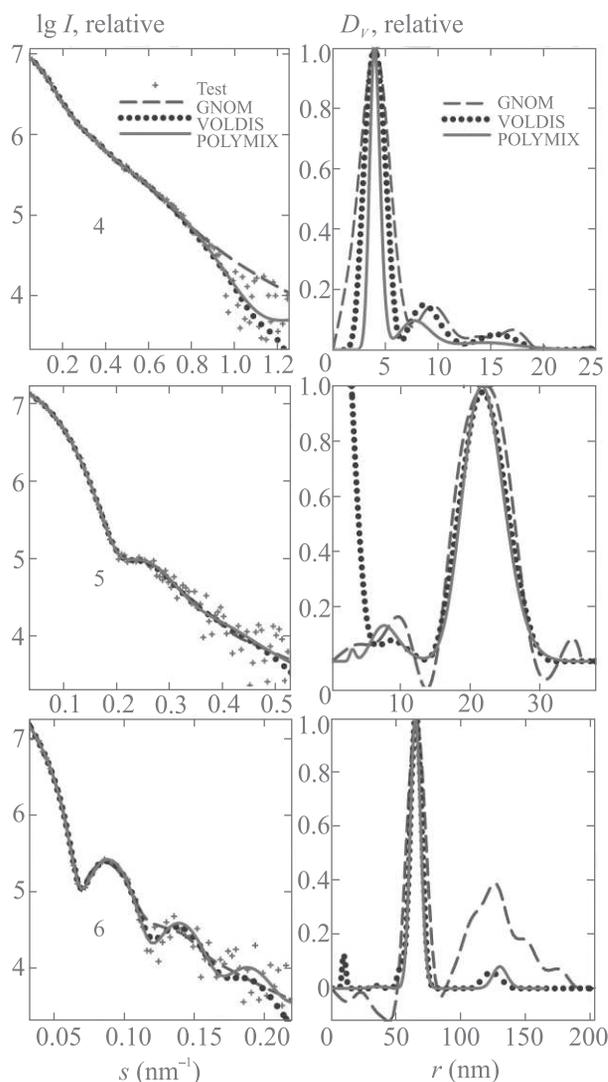


Рис. 2. (Цветной онлайн) Данные от трехкомпонентной системы полидисперсных сферических частиц, номера строк соответствуют моделям 4–6 из табл. 1. Обозначения и цвета аналогичны рис. 1

пользовать в качестве стартовых параметры, оцененные по решениям GNOM и MIXTURE/POLYMIX.

Схема комбинированного использования алгоритмов восстановления функции распределения. Основываясь на сравнении полученных результатов восстановления функции распределения частиц по размерам разными алгоритмами, мы предлагаем следующую схему их комбинированного использования:

1) использовать программу VOLDIS для оценки гистограммы распределения, числа компонентов (т.е. вкладов, представленных унимодальными распределениями) и среднего радиуса частиц в каждом компоненте. При этом особое внимание следует обратить

на область углов рассеяния от 0 до начального экспериментального. Теоретическая кривая интенсивности должна монотонно экстраполировать экспериментальный контур, в противном случае найденное решение будет содержать артефакты в виде значительных вкладов больших размеров частиц. Для того чтобы этого избежать, необходимо провести повторный поиск, искусственно уменьшая R_{\max} ;

2) использовать программу GNOM для нахождения предварительной оценки функции распределения, указывая в ней максимальный размер частиц R_{\max} , подобранный на предыдущем шаге. Цель данного численного эксперимента является получение гладкого контура, уточнения числа и параметров компонентов;

3) уточнить параметры распределения с помощью программ POLYMIX/MIXTURE, используя в качестве стартового приближения параметры распределений, оцененные на предыдущих шагах.

Предложенная схема позволяет улучшить устойчивость восстановления функции распределения частиц по размерам с использованием малоугловых данных. На третьем шаге схемы можно дополнительно проводить комбинирование локальных и глобальных минимизационных методов, что позволит еще больше расширить диапазон сходимости к правильному решению и, таким образом, повысить достоверность определения распределений по размерам, как было показано в работе [13].

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования в рамках выполнения работ по Государственному заданию ФНИЦ “Кристаллография и фотоника” РАН, а также

при частичной финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант # 19-32-90190).

1. D. I. Svergun, *J. Appl. Crystallogr.* **25**, 495 (1992).
2. D. Franke, M. V. Petoukhov, P. V. Konarev, A. Pankovich, A. Tuukkanen, H. D. T. Mertens, A. G. Kikhney, N. R. Hajizadeh, J. M. Franklin, C. M. Jeffries, and D. I. Svergun, *J. Appl. Crystallogr.* **50**, 1212 (2017).
3. O. Glatter, *J. Appl. Crystallogr.* **12**, 166 (1979).
4. I. Bressler, B. R. Pauw, and A. F. Thuenemann, *J. Appl. Crystallogr.* **48**, 962 (2015).
5. G. V. Schulz, *Z. Phys. Chem. Abt. B* **30**, 379 (1935).
6. P. V. Konarev, V. V. Volkov, A. V. Sokolova, M. H. J. Koch, and D. I. Svergun, *J. Appl. Crystallogr.* **36**, 1277 (2003).
7. I. Bressler, J. Kohlbrecher, and A. F. Thuenemann, *J. Appl. Crystallogr.* **48**, 1587 (2015).
8. A. N. Tikhonov and V. Ya. Arsenin, *Solution of ill Posed Problems*, Wiley, N.Y. (1977), 258 p.
9. P. E. Gill, W. Murray, and M. H. Wright, *Practical Optimization*, Academic Press, London (1981), 401 p.
10. J. J. More, *The Levenberg-Marquardt Algorithm, Implementation and Theory. Lecture Notes in Mathematics*, ed. by G. A. Watson, Springer-Verlag, Berlin (1978), v. 630, p. 105.
11. A. E. Kryukova, P. V. Konarev, and V. V. Volkov, *Crystallogr. Rep.* **63**, 26 (2018).
12. A. E. Kryukova, A. S. Kozlova, P. V. Konarev, V. V. Volkov, and V. E. Asadchikov, *Crystallogr. Rep.* **63**, 531 (2018).
13. A. E. Kryukova, P. V. Konarev, V. V. Volkov, and V. E. Asadchikov, *J. Mol. Liq.* **283**, 221 (2019).

РОССИЙСКАЯ АКАДЕМИЯ НАУК

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

том 112

Выпуск 10

25 ноября 2020

*Журнал издается под руководством
Отделения физических наук РАН*

Главный редактор В. М. Пудалов

Заместители главного редактора

Г. Е. Воловик, В. П. Пастухов

Зав. редакцией *И. В. Подыниглазова*

Адрес редакции 119334 Москва, ул. Косыгина 2

тел./факс (499)-137-75-89

e-mail letters@kapitza.ras.ru

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

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

© Российская академия наук, 2020

© Редколлегия журнала “Письма в ЖЭТФ” (составитель), 2020

Ограничение на новое короткодействующее взаимодействие спин-орбитального типа из данных нейтронной дифракции в нецентросимметричном кристалле

В. В. Воронин⁺*, В. В. Федоров⁺⁺×, Д. Д. Шапиро⁺⁺*1)

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

* Санкт-Петербургский государственный университет, 199034 С.-Петербург, Россия

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

Поступила в редакцию 21 сентября 2020 г.

После переработки 21 октября 2020 г.

Принята к публикации 21 октября 2020 г.

Из эксперимента по прохождению нейтрона через нецентросимметричный совершенный кристалл вблизи брэгговского отражения, характеризуемого вектором обратной решетки \mathbf{g} , получено ограничение на константу g_A нового короткодействующего взаимодействия (спин-орбитального типа) между нуклонами, осуществляемого обменом легким бозоном со спином 1 и массой $m_A = \hbar/\lambda_{Ac}$. Ограничения составили $g_A^2 \leq 4.5 \cdot 10^{-24} (g^2 + 1/\lambda_A^2)$. В диапазоне радиусов взаимодействия $\lambda_A = 10^{-12} \div 10^{-5}$ м данные ограничения являются наилучшими.

DOI: 10.31857/S1234567820220012

1. Современной теорией физики частиц является Стандартная Модель (СМ), которая описывает мир в рамках четырех фундаментальных взаимодействий – сильного, слабого, электромагнитного и гравитации. Однако, существует ряд явлений, которые СМ не способна объяснить. Среди них можно выделить проблему калибровочной иерархии (гравитация чрезвычайно мала по сравнению с другими взаимодействиями) и проблему космологической постоянной [1, 2]. Кроме того, когерентное сечение рассеяния He, измеренное с помощью нейтронной интерферометрии, не совпадает с сечением рассеяния, полученном из рассеяния ультрахолодных нейтронов на ядрах [3]. Существует также “загадка радиуса протона” – его значения, полученные разными методами, расходятся друг с другом [4]. Стоит упомянуть и аномалии в распаде возбужденных ядер гелия и бериллия, которые могут свидетельствовать о так называемой частице X17 [5]. Еще одной проблемой является магнитный момент мюона, чье расчетное значение отличается от экспериментального [6]. Возможные объяснения таких явлений лежат в области различных расширений СМ, предсказывающих существование новых бозонов, а значит и новых взаимодействий. Все такие взаимодействия глобально можно разделить на два

типа – спин-зависимые и спин-независимые. Основное внимание научного сообщества обращено к спин-независимым силам, поиск которых имеет достаточно длительную историю [7, 8]. Спин-зависимые силы исследуются менее интенсивно, несмотря на то, что они могут приводить к более широкому кругу наблюдаемых эффектов. Все такие силы были классифицированы в статье [9]. В [10] магниторезонансным методом получены ограничения на взаимодействие спин-орбитального типа, обусловленное обменом легким бозоном со спином 1 и константой связи g_A , в диапазоне радиусов взаимодействия $\lambda_A = 10^{-5} \div 10^{-2}$ м. В данной работе такие ограничения продлены в область $\lambda_A = 10^{-12} \div 10^{-5}$ м.

2. Оператор спин-орбитального взаимодействия между нуклонами, связанный с обменом частицей массы $m_A = \hbar/\lambda_{Ac}$ со спином 1, в нерелятивистском приближении может быть записан как

$$H_A^{SO} = -\frac{q_A \hbar}{2m^2 c^2} \gamma_A \boldsymbol{\sigma} [\nabla \phi^A \times \mathbf{p}], \quad (1)$$

где $\phi^A(\mathbf{r}) = q_A e^{-r/\lambda_A}/r$ – потенциал взаимодействия нуклона-источника, расположенного в начале координат с пробным нуклоном, обусловленный этим обменом, q_A – константа взаимодействия с размерностью электрического заряда, m – масса нуклона, $\boldsymbol{\sigma}/2$, \mathbf{p} – операторы спина и импульса пробного нуклона соответственно, $\gamma_A \sim 1$ – величина аналога магнит-

¹⁾e-mail: shapiro@mail.ru

ного момента нуклона в единицах $q_A \hbar / 2mc$ ($2\gamma_A$ – аналог g -фактора нуклона). Безразмерная константа g_A , используемая в [10], связана с q_A соотношением $g_A^2 = 8\pi q_A^2 / \hbar c$. Рассмотрим влияние такого взаимодействия на дифракцию нейтронов в совершенном нецентросимметричном кристалле.

Пространственно-периодический потенциал кристалла (представляющий собой сумму потенциалов атомов, расположенных упорядоченно) можно представить в виде разложения по векторам обратной решетки (т.е. в виде суммы потенциалов всевозможных кристаллографических плоскостей, характеризуемых векторами обратной решетки \mathbf{g})

$$\begin{aligned} V(\mathbf{r}) &= \sum_a V_a(\mathbf{r} - \mathbf{r}_a) = \sum_g V_g e^{i\mathbf{g}\mathbf{r}} = \\ &= \sum_{g \geq 0} (V_g e^{i\mathbf{g}\mathbf{r}} + V_{-g} e^{-i\mathbf{g}\mathbf{r}}) = \\ &= V_0 + \sum_{g > 0} 2v_g \cos(\mathbf{g}\mathbf{r} + \phi_g). \end{aligned} \quad (2)$$

Здесь комплексные амплитуды гармоник V_g потенциала представлены в виде:

$$V_g = v_g e^{i\phi_g}, \quad V_{-g} = V_g^* = v_g e^{-i\phi_g},$$

где v_g , ϕ_g – модуль и фаза g -гармоники.

В общем случае, потенциал кристалла содержит все виды взаимодействия: ядерное, кулоновское, рассматриваемое короткодействующее и др.

$$V(\mathbf{r}) = V^N(\mathbf{r}) + e\phi^Q(\mathbf{r}) + q_A \phi^A(\mathbf{r}) + \dots \quad (3)$$

Точно так же, как и амплитуды гармоник:

$$V_g = V_g^N + V_g^Q + V_g^A + \dots$$

Амплитуды гармоник соответствующих потенциалов определяются амплитудами рассеяния частицы ячейками кристалла (структурными амплитудами):

$$V_g^L = \int_{V=1} d^3r e^{-i\mathbf{g}\mathbf{r}} V^L(\mathbf{r}) = -\frac{2\pi\hbar^2}{m} N_c F_g^L, \quad (4)$$

где $L = N, Q, A, \dots$, а структурная (комплексная) амплитуда F_g^L имеет вид:

$$F_g^L = \sum_i e^{-W_{ig}} f_i^L(\mathbf{g}) e^{-i\mathbf{g}\mathbf{r}_i}, \quad (5)$$

W_{ig} – фактор Дебая–Уоллера, $f_i^L(\mathbf{g})$ – амплитуда рассеяния i -м атомом ячейки с передачей импульса $\hbar\mathbf{g}$.

Таким образом, ядерные амплитуды рассеяния, $f_i^N(\mathbf{g}) = -a_i$, равные длинам рассеяния нейтронов на ядрах атомов ячейки, определяют ядерный

потенциал систем плоскостей кристалла. Кулоновские амплитуды рассеяния определяют электрический потенциал, а амплитуды рассеяния на потенциалах $\phi_i^A(\mathbf{r}) = A_i q_A e^{-r/\lambda_A} / r$ атомов ячейки, содержащих A_i нуклонов, с передачей импульса $\hbar\mathbf{g}$ определяют амплитуду g -гармоники рассматриваемого потенциала системы плоскостей \mathbf{g} .

Амплитуда рассеяния теплового нейтрона на i -м атоме с атомным номером A_i , обусловленная потенциалом $\phi_i^A(\mathbf{r})$, равна

$$\begin{aligned} f_i^A(\mathbf{g}) &= \frac{m A_i q_A}{2\pi\hbar^2} \int_{V=1} d^3r e^{-i\mathbf{g}\mathbf{r}} \phi_i^A(\mathbf{r}) = \\ &= \frac{m}{2\pi\hbar^2} \frac{4\pi q_A^2 A_i}{g^2 + \frac{m_A^2 c^2}{\hbar^2}} = \frac{A_i g_A^2}{4\pi} \frac{1}{\lambda_{cn}} \frac{\lambda_A^2}{1 + g^2 \lambda_A^2}, \end{aligned} \quad (6)$$

где $\lambda_{cn} = \hbar/mc$. Таким образом, для амплитуды g -гармоники данного потенциала имеем

$$\begin{aligned} V_g^A &= -\frac{2\pi\hbar^2}{m} N_c f^A(\mathbf{g}) \sum_i A_i e^{i\mathbf{g}\mathbf{r}_i} = \\ &= \frac{g_A^2 \lambda_{cn} \lambda_A^2 N_c m c^2}{2(1 + g^2 \lambda_A^2)} A_g e^{i\phi_g^A} \equiv v_g^A e^{i\phi_g^A}, \end{aligned} \quad (7)$$

где $\sum_i A_i e^{i\mathbf{g}\mathbf{r}_i} = A_g e^{i\phi_g^A}$.

Аналогично получаются выражения для гармоник ядерного V^N и электрического V^Q потенциалов:

$$V_g^N = v_g^N e^{i\phi_g^N}, \quad V_g^Q = v_g^Q e^{i\phi_g^Q}.$$

При движении нейтрона в кристалле в направлениях, близких к брэгговским для некоторой системы плоскостей, во взаимодействии нейтрона с кристаллом существенной является только соответствующая гармоника потенциала.

Таким образом, вблизи выполнения условий дифракции потенциал, ответственный за дифракцию, имеет вид:

$$\begin{aligned} V_g(\mathbf{r}) &= 2v_g^N \cos(\mathbf{g}\mathbf{r} + \phi_g^N) + 2v_g^Q \cos(\mathbf{g}\mathbf{r} + \phi_g^Q) + \\ &+ 2v_g^A \cos(\mathbf{g}\mathbf{r} + \phi_g^A) + \dots \end{aligned} \quad (8)$$

Для кристалла, имеющего центр симметрии, выбором начала координат в этом центре все фазы обращаются в нуль. Для нецентросимметричного кристалла фазы не совпадают [11–16], так что мы можем положить $\phi_g^N = 0$, остальные же фазы будут определяться структурой кристалла и распределением зарядов и масс внутри ячейки. Заметим, что, в силу своей малости, остальные члены практически не сдвигают суммарной фазы полного потенциала, которым определяется структура волновой функции нейтрона в кристалле [13]. В результате распространение нейтрона в кристалле определяется ядерным

потенциалом, и пространственная структура волновой функции нейтрона повторяет его периодичность, т.е. положения максимумов и минимумов квадрата модуля волновой функции определяются положениями максимумов и минимумов именно ядерного потенциала [12–16]. Это означает, что нейтроны концентрируются либо в минимумах, либо в максимумах ядерного потенциала.

Действительно, волновую функцию $\psi(\mathbf{r})$ нейтрона, проходящего через кристалл в условиях, достаточно близких к брэгговским для некоторой системы плоскостей (по сравнению с другими плоскостями), в первом порядке теории возмущений можно записать [13]:

$$\psi(\mathbf{r}) = e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} + \frac{V_g^N}{E_k - E_{k_g}} e^{i\mathbf{k}_g\mathbf{r}} \equiv e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \left[1 - \frac{U_g^N}{2\Delta_g} e^{i\mathbf{g}\mathbf{r}} \right]. \quad (9)$$

Здесь начало координат помещено в максимум ядерного потенциала, т.е. фаза V_g^N равна нулю, $\mathbf{k}_g = \mathbf{k} + \mathbf{g}$, $E_k = \hbar^2 k^2 / 2m$, $E_{k_g} = \hbar^2 k_g^2 / 2m$, $V_g^N = \hbar^2 U_g^N / 2m$, $\Delta_g = (k_g^2 - k^2) / 2$ – параметр отклонения от условия Брэгга и

$$|\psi(\mathbf{r})|^2 = 1 - \frac{U_g^N}{\Delta_g} \cos(\mathbf{g}\mathbf{r}) = 1 - \Delta_B \cos(\mathbf{g}\mathbf{r}), \quad (10)$$

где $\Delta_B \equiv U_g^N / \Delta_g$ – безразмерный параметр отклонения от условия Брэгга

Формулы (9), (10) справедливы при $\Delta_g \gg U_g$ ($\Delta_B \ll 1$), в непосредственной близости к брэгговскому резонансу следует использовать двухволновое приближение.

В нецентросимметричном кристалле имеется сдвиг фазы между различными типами взаимодействия [12–16], (здесь существенна разница между ядерной фазой и остальными $\phi_g^A \neq \phi_g^Q \neq 0$), так что в области концентрации нейтронов (максимумов $|\psi(\mathbf{r})|^2$), определяемой ядерным взаимодействием, возникают ненулевые силовые поля, определяемые градиентами соответствующих потенциалов. Величины полей, действующих на нейтрон, определяются их средними по состоянию $\psi(\mathbf{r})$ нейтрона. В частности, возникает сильное электрическое поле с напряженностью до 10^9 В/см [11–15], которое было предложено использовать для поиска электрического дипольного момента нейтрона [13, 14] и использовалось в эксперименте [15].

С другой стороны, наличие ненулевого градиента потенциала $V_g^A(\mathbf{r})$ в области концентрации нейтронов

$$\nabla V_g^A(\mathbf{r}) = -2v_g^A \mathbf{g} \sin(\mathbf{g}\mathbf{r} + \phi_g^A) \quad (11)$$

приводит к ненулевому градиенту этого потенциала в состоянии (9)

$$\langle \psi(\mathbf{r}) | \nabla V_g^A(\mathbf{r}) | \psi(\mathbf{r}) \rangle = \Delta_B v_g^A \mathbf{g} \sin(\phi_g^A), \quad (12)$$

и означает ненулевое среднее оператора спин-орбитального взаимодействия (1)

$$\begin{aligned} - \langle \psi(\mathbf{r}) | \frac{q_A \hbar}{2m^2 c^2} \gamma_A \boldsymbol{\sigma} [\nabla \phi^A \times \mathbf{p}] | \psi(\mathbf{r}) \rangle &= \\ &= \Delta_B \frac{v_g^A}{q_A} \sin \phi_g^A \frac{\hbar q_A}{2mc} \gamma_A \boldsymbol{\sigma} \left[\frac{\mathbf{v}}{c} \times \mathbf{g} \right] \equiv \\ &\equiv \Delta_B \frac{\hbar q_A}{2mc} \gamma_A \boldsymbol{\sigma} \mathbf{H}_g^A \equiv \Delta_B \frac{\hbar q_A}{2mc} \gamma_A \boldsymbol{\sigma} \left[\frac{\mathbf{v}}{c} \times \mathbf{E}_g^A \right], \end{aligned} \quad (13)$$

где мы обозначили

$$\mathbf{E}_g^A = \frac{4\pi \lambda_A^2 N_c q_A}{1 + g^2 \lambda_A^2} A_g \sin \phi_g^A \mathbf{g} \quad (14)$$

– аналог электрического поля,

$$\mathbf{H}_g^A = \left[\frac{\mathbf{v}}{c} \times \mathbf{E}_g^A \right] \quad (15)$$

– аналог швингеровского магнитного поля, которое действует на нейтрон, движущийся в поле \mathbf{E}_g^A , в системе координат, связанной с нейтроном.

Наличие взаимодействия (15) приведет к дополнительному повороту спина нейтрона вокруг направления $[\mathbf{v} \times \mathbf{g}]$ на угол

$$\begin{aligned} \delta_A &= \omega_A \frac{L}{v} = \Delta_B \frac{q_A \gamma_A H_g^A L}{mc} \frac{L}{v} = \\ &= \Delta_B \frac{g_A^2 \lambda_{cn} \gamma_A \lambda_A^2 g N_c L}{2(1 + g^2 \lambda_A^2)} A_g \sin \phi_g^A \sin \alpha_B, \end{aligned} \quad (16)$$

где α_B – угол между направлениями векторов \mathbf{v} и \mathbf{g} , $\sin \alpha_B = \sin(\pi/2 - \theta_B)$, θ_B – угол Брэгга, L – толщина кристалла.

Заметим, что выражение (12) справедливо при $\Delta_g \gg U_g$ ($\Delta_B \ll 1$), его более точное вычисление в двухволновом приближении приводит к результату

$$\langle \psi(\mathbf{r}) | \nabla V_g^A(\mathbf{r}) | \psi(\mathbf{r}) \rangle = \frac{\Delta_B}{\sqrt{\Delta_B^2 + 1}} v_g^A \mathbf{g} \sin(\phi_g^A). \quad (17)$$

Таким образом, величина \mathbf{E}_g^A (14) есть максимальное значение градиента потенциала $V_g^A(\mathbf{r})$ при точном выполнении условия Брэгга ($\Delta_B \rightarrow \infty$).

3. Нами были проанализированы данные, полученные в эксперименте по измерению ЭДМ нейтрона с помощью вращения спина в нецентросимметричном кристалле [15]. В эксперименте использовался искусственный кристалл кварца размерами $140 \times 140 \times 35$ мм³. Совершенство кристалла исследовалось методом, описанным в [17, 18], и

однородность межплоскостного расстояния составляла $\Delta d/d < 5 \cdot 10^{-6}$ по всему объему кристалла. Параметры плоскости (110), которая использовалась в эксперименте, составляли $g = 2.56 \cdot 10^{10} \text{ м}^{-1}$; $A_g^A = 51$; $\phi_g^A = 0.42$ [16]. Угол дифракции составлял $\theta_B = 86^\circ$. Схема эксперимента приведена на рис. 1 и описана в [15].

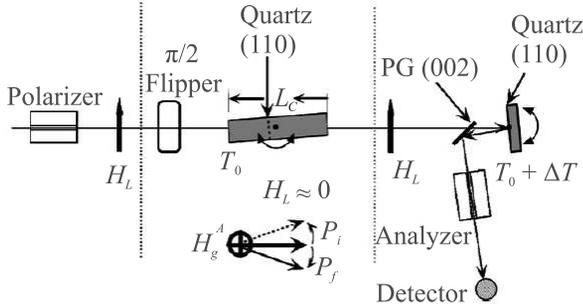


Рис. 1. Схема экспериментальной установки [15]. H_L – внешнее магнитное поле, \mathbf{H}_g^A – аналог швингеровского магнитного поля, P_i , P_f – начальная и конечная поляризации пучка соответственно, L_C – длина кристалла, T_0 – температура кристалла

Экспериментально измеренный угол вращения спина нейтрона вокруг оси \mathbf{H}_g^A совпадал с расчетным значением на уровне $\sim 10^{-2}$, что говорит об отсутствии искомого взаимодействия на уровне точности, соответствующем углу вращения $\delta_A \sim 10^{-2}$. Из (16) нетрудно получить соответствующее ограничение на константу связи искомого взаимодействия:

$$g_A^2 \gamma_A \leq 4.5 \cdot 10^{-24} (g^2 + 1/\lambda_A^2). \quad (18)$$

Здесь g выражено в м^{-1} , а λ_A – в м.

Особенностью данного метода является его высокая чувствительность в диапазоне радиусов взаимодействия $\lambda_A = 10^{-12} \div 10^{-5}$ м, недоступная другим методам. К примеру, в работе [19] наилучшими ограничениями оказались

$$g_A^2 e^{-r/\lambda_A} < 1.5 \cdot 10^{-40}, \quad (19)$$

где $r = 0.5$ м – расстояние между источником ^3He и магнитометром. В работе [10] ограничения составили

$$g_A^2 < \frac{4mc^2}{lN\hbar c} \cdot \frac{1}{\lambda_A} \cdot (|\phi_0| + 1.96 \cdot \delta\phi), \quad (20)$$

где l – длина образца, N – плотность числа нуклонов, ϕ_0 – параметр фитирования зависимости сдвига фазы рамзеевских осцилляций от расстояния между образцом и пучком, $\delta\phi$ – погрешность этого параметра. Результирующие ограничения приведены на

рис. 2. В диапазоне $\lambda_A = 10^{-12} \div 10^{-5}$ м полученные в данной работе ограничения не имеют аналогов и являются наилучшими.

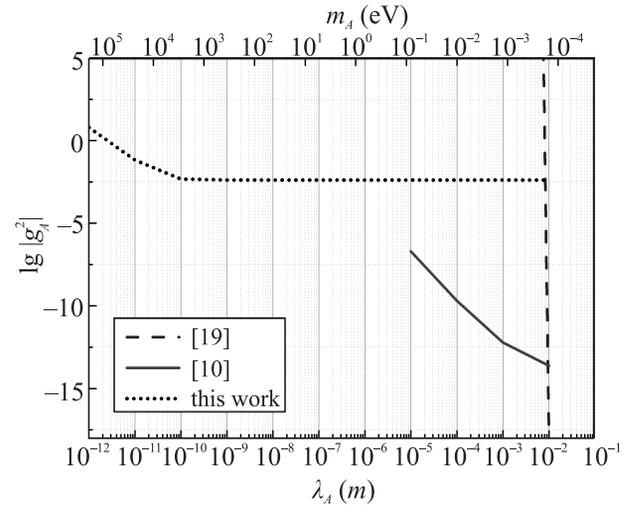


Рис. 2. Ограничения на константу связи g_A спин-зависимого взаимодействия спин-орбитального типа. Разрешенная область значений для g_A и λ_A расположена под линиями. Ограничения даны для $\gamma_A = 1$

4. Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований в рамках научного проекта # 19-32-90202.

1. C. D. Hoyle, D. J. Kapner, B. R. Heckel, E. G. Adelberger, J. H. Gundlach, U. Schmidt, and H. E. Swanson, Phys. Rev. D **70**, 042004 (2004).
2. E. G. Adelberger, B. R. Heckel, and A. E. Nelson, Ann. Rev. Nucl. Part. Sci. **53**, 77 (2003).
3. A. P. Serebrov, P. Geltenbort, O. M. Zhrebtsov, S. V. Sbitnev, V. E. Varlamov, A. V. Vassiljev, M. S. Lasakov, I. A. Krasnoschekova, and S. N. Ivanov, Pis'ma v ZhETF **97**(12), 777 (2013).
4. J.-Ph. Karr and D. Marchand, Nature **575**, 61 (2019).
5. D. S. Firak, A. J. Krasznahorkay, and M. Csatlós, EPJ Web of Conferences **232**, 04005 (2020).
6. Th. Blum, A. Denig, I. Logashenko, E. de Rafael, B. Lee Roberts, Th. Teubner, and G. Venanzoni, arXiv:1311.2198 [hep-ph] (2013).
7. I. Antoniadis, S. Baessler, M. Buchner, V. V. Fedorov, S. Hoedl, A. Lambrecht, V. V. Nesvizhevsky, G. Pignol, K. V. Protasov, S. Reynaud, Yu. Sobolev, and C. R. Physique **12**, 755 (2011).
8. J. Murata and S. Tanaka, Clas. Quantum Gravity **32**(3), 033001 (2015).
9. B. A. Dobrescu and I. Mocioiu, JHEP **11**, 005 (2006).
10. F. M. Piegsa and G. Pignol, Phys. Rev. Lett. **108**, 181801 (2012).

11. В. Л. Алексеев, Е. Г. Лапин, Е. К. Леушкин, В. Л. Румянцев, О. И. Сумбаев, В. В. Федоров, *ЖЭТФ* **94**, 371 (1988).
12. В. Л. Алексеев, В. В. Воронин, Е. Г. Лапин, Е. К. Леушкин, В. Л. Румянцев, О. И. Сумбаев, В. В. Федоров, *ЖЭТФ* **96**, 1921 (1989).
13. В. В. Федоров, *Материалы XXVI Зимней школы ЛИЯФ (физ. элем. частиц)* (1991), с. 65.
14. V. V. Fedorov, V. V. Voronin, and E. G. Lapin, *J. Phys. G* **18**, 1133 (1992).
15. V. V. Fedorov, I. A. Kuznetsov, E. G. Lapin, S. Yu. Semenikhin, and V. V. Voronin, *Physica B* **385–386**, 1216 (2006).
16. В. В. Воронин, В. В. Федоров, И. А. Кузнецов, *Письма в ЖЭТФ* **90**(1), 7 (2009).
17. V. V. Fedorov, I. A. Kuznetsov, E. G. Lapin, S. Yu. Semenikhin, V. V. Voronin, Yu. P. Braginetz, and K. Yu. Amosov, *Nuclear Instrum. Methods Phys. Res. A* **593**, 472 (2008).
18. С. Ю. Семенихин, Ю. П. Брагинец, В. В. Воронин, И. А. Кузнецов, Е. Г. Лапин, В. В. Федоров, Я. А. Бердников, А. Я. Бердников, Е. О. Вежлев, *ЖТФ* **81**(3), 71 (2011).
19. G. Vasilakis, J. M. Brown, T. W. Kornack, and M. V. Romalis, *Phys. Rev. Lett.* **103**, 261801 (2009).

Наблюдение фотоиндуцированной проводимости регулярной доменной структуры с наклонными стенками в $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ на длине волны 632.8 нм при дифракции Брэгга

Е. Н. Савченков⁺¹⁾, А. В. Дубиков⁺, А. Е. Шараева⁺, Н. И. Буримов⁺, С. М. Шандаров^{+*}, А. А. Есин^{*},
А. Р. Ахматханов^{*}, В. Я. Шур^{*}

⁺Томский государственный университет систем управления и радиоэлектроники, 634050 Томск, Россия

^{*}Уральский федеральный университет, 620002 Екатеринбург, Россия

[×]Центр квантовых технологий, МГУ им. М. В. Ломоносова, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 19 августа 2020 г.

После переработки 15 октября 2020 г.

Принята к публикации 15 октября 2020 г.

Впервые наблюдалось индуцированное излучением с длиной волны 632.8 нм изменение проводимости регулярной доменной структуры (РДС), сформированной в кристалле 5% $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$. Оно проявлялось в увеличении скорости релаксации для эффективности дифракции Брэгга на РДС, наблюдаемой после приложения внешнего электрического поля, с ростом интенсивности зондирующего пучка. На начальном участке релаксации, связанной с экранировкой внешнего поля вследствие перераспределения зарядов по проводящим наклонным доменным стенкам РДС, эта зависимость является линейной. Для зондирующего пучка с интенсивностью 49 мВт/мм² индуцированная эффективная проводимость РДС, которая оценена как $\sigma_{\text{eff}} = 3.5 \cdot 10^{-9} \text{ Ом}^{-1} \text{ м}^{-1}$, более чем на четыре порядка превосходит темновую проводимость монодоменного образца $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$.

DOI: 10.31857/S1234567820220036

Регулярные доменные структуры (РДС) в кристаллах ниобата лития (LN) являются в настоящее время основой для одного из подходов к развитию нелинейно-оптических методов преобразования спектральных характеристик лазерного излучения [1–6] и электрооптического управления его параметрами [1, 5–8]. РДС в кристаллах LN, создаваемые методами доменной инженерии [1, 9–11], могут иметь доменные стенки с наклоном относительно полярной оси, достигающим 0.2° и более [11–15]. Такие наклонные стенки в сегнетоэлектриках, являющиеся заряженными, благодаря своим уникальным свойствам рассматриваются как перспективные функциональные элементы для реализации реконфигурируемых систем наноэлектроники, квантовой и волноводной фотоники и гибридной оптоэлектроники [9, 11, 14].

Наиболее привлекательным свойством заряженных доменных стенок является двумерная проводимость металлического типа, на порядки превосходящая ее величину для монодоменного кристалла [11–14, 16, 17]. Проводимость заряженных стенок для отдельных доменов изучалась методами атомно-

силовой микроскопии (АСМ) [9, 11–14, 17] и наноимпедансной спектроскопии [12]. При этом в образцах $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ с изолированными доменами шестиугольной формы сигнал проводимости АСМ наблюдался только при подсветке одной из граней кристалла ультрафиолетовым излучением с энергией кванта, превосходящей ширину его запрещенной зоны [13]. Эти домены имели положительно заряженные доменные стенки и формировались с использованием жидких электродов, а ток АСМ имел порядок единиц пА. Использование для переключения поляризации $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ электродов типа металл/металл [14] или комбинации металл/жидкость, в которой электрод с металлическим типом проводимости контактировал с *Z*-полярной гранью [15], позволило создавать отдельные домены и доменные структуры с положительно заряженными стенками, обладающими стабильной во времени большой проводимостью и в темновых условиях. Например, приложение напряжения $U = 100 \text{ В}$ к структуре, содержащей решетку из 732 областей с длиной 1 мм, переполаризованных методом каллиграфической записи доменов [18] с помощью АСМ с иглой из карбида вольфрама, вызы-

¹⁾email: rossler@mail.ru

вало протекание значительного тока, достигающего около 8 мА [14].

Для РДС с углом наклона доменных стенок к полярной оси кристалла 5% MgO:LiNbO₃ $\alpha = 0.31^\circ$ и пространственным периодом $\Lambda = 8.79$ мкм величина эффективной проводимости была оценена в [19] по кинетике релаксации эффективности дифракции Брэгга, наблюдаемой после приложения постоянного электрического поля, как $\sigma_{\text{eff}} = 5.96 \cdot 10^{-11} \text{ Ом}^{-1} \text{ м}^{-1}$. При этом использовался зондирующий лазерный пучок с неизменной интенсивностью и длиной волны $\lambda = 655$ нм, энергия квантов которого была существенно меньше, чем ширина запрещенной зоны кристалла. Возможность оптического управления проводимостью РДС с наклонными доменными стенками в кристаллах ниобата лития излучением с энергией квантов, не превосходящей ширину запрещенной зоны, ранее не изучалась.

В настоящей работе представлены первые результаты по экспериментальному наблюдению зависимости проводимости РДС с наклонными стенками в кристалле 5% MgO:LiNbO₃ от интенсивности индуцирующего ее зондирующего лазерного пучка с длиной волны 632.8 нм.

Исследуемая РДС с приведенными выше параметрами из [19], показанная на рис. 1, была

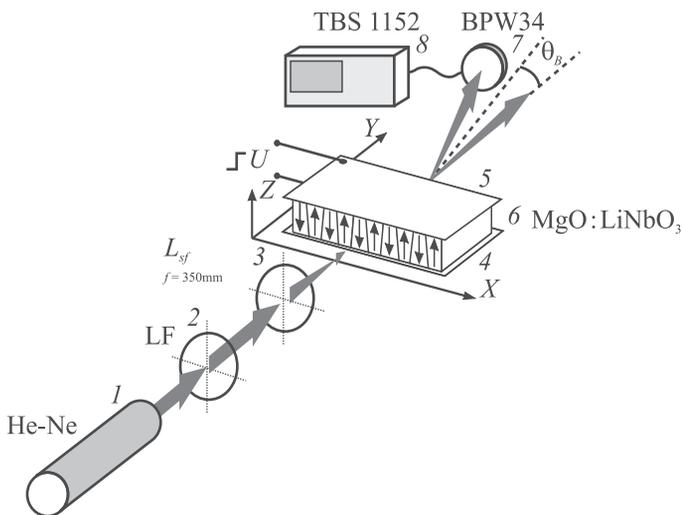


Рис. 1. (Цветной онлайн) Схема экспериментальной установки: 1 – He-Ne лазер; 2 – сменный светофильтр; 3 – положительная сферическая линза; 4 и 5 – медные электроды; 6 – кристалл LN с РДС; 7 – pin-фотодиод; 8 – осциллограф

сформирована методом переключения поляризации под действием внешнего пространственно-периодического электрического поля [10] в образце с размерами $40 \times 2 \times 1$ мм³ вдоль осей X , Y и Z ,

соответственно. Для приложения внешнего электрического поля к РДС использовались плоские медные электроды, механически прижимаемые к Z -граням кристалла.

В экспериментах использовалось излучение He-Ne лазера с длиной волны $\lambda = 632.8$ нм и выходной мощностью 22 мВт, ослабляемое до необходимой величины набором светофильтров. Пучок лазера имел гауссову форму с радиусом $r_0 = 0.35$ мм и фокусировался примерно на середину входной грани $y = 0$ образца с РДС сферической линзой с фокусным расстоянием $F = 350$ мм. Максимальная входная интенсивность зондирующего пучка I_0 изменялась от 1.4 до 49.0 мВт/мм² при радиусе $r_f = 0.2$ мм. Точная настройка образца по углу Брэгга и по вертикальному положению перетяжки пучка осуществлялась в отсутствие приложенного напряжения с помощью pin-фотодиода BPW34, по максимуму мощности в первом дифракционном порядке. Эффективность дифракции Брэгга на доменных стенках имела значение $\eta_{dw} = 0.012$.

Подключение к электродам постоянного напряжения от стабилизированного источника питания осуществлялось тумблером через резистор с номиналом $R = 1$ кОм. При этом происходило увеличение мощности дифрагированного пучка, регистрируемое цифровым осциллографом TBS 1152 на начальном участке, как ступенчатый импульс с длительностью фронта ~ 25 нс. За это время дифракционная эффективность достигала максимального значения, зависящего от приложенного напряжения, а затем наблюдалась ее сравнительно медленная релаксация к исходной величине η_{dw} . Максимальное значение достигаемой дифракционной эффективности $\eta_m \approx 0.13$ не зависело от интенсивности зондирующего пучка I_0 и наблюдалось для приложенного к РДС напряжения $U_0 = \pm 500$ В. Время наблюдения процесса релаксации с помощью цифрового осциллографа TBS 1152 варьировалось в зависимости от I_0 и определялось скоростью развертки, составляющей от 0.025 до 1 с на деление.

Типичные осциллограммы кинетики нормированной дифракционной эффективности $\eta_{\mp}(t)/\eta_m$ на интервале продолжительностью 2 с для значений приложенного напряжения $U_0 = -500$ и $+500$ В представлены на рис. 2а и б соответственно. Видно, что динамика релаксации при положительном и отрицательном напряжениях слегка отличается, а ее скорость растет с интенсивностью зондирующего пучка.

Из представленной на рис. 3 осциллограммы для увеличенной длительности развертки видно, что величина дифракционной эффективности $\eta_{+}(t)$ воз-

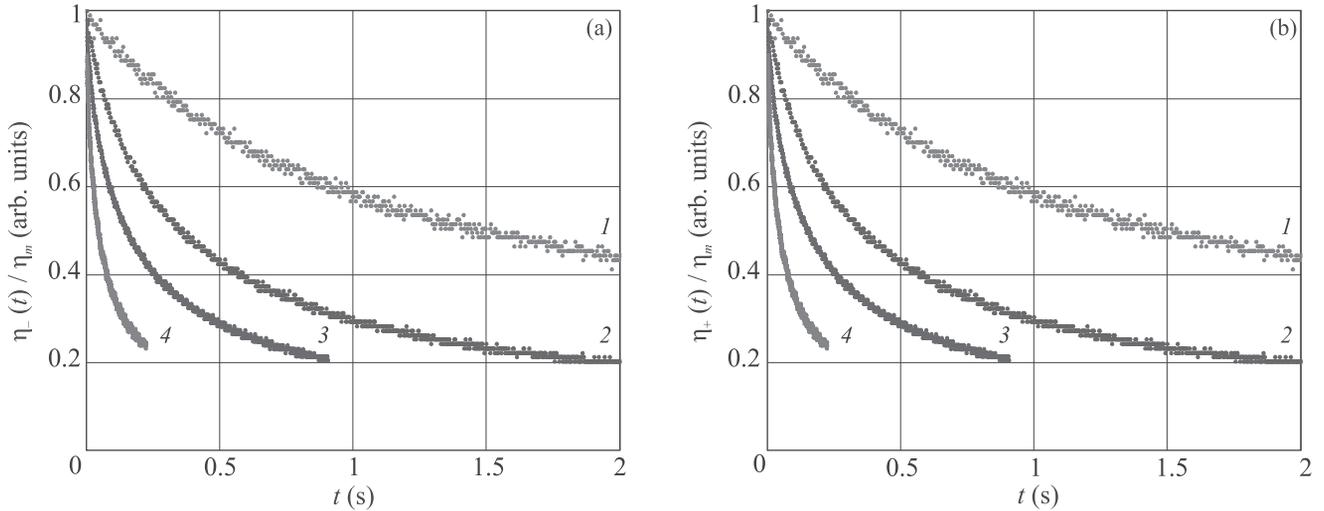


Рис. 2. (Цветной онлайн) Динамика эффективности дифракции Брэгга на РДС в первый порядок, наблюдаемая после приложения внешнего постоянного напряжения $U_0 = -500$ В (а) и $U_0 = +500$ В (б) для зондирующего гауссова пучка с интенсивностью в максимуме $I_0 = 1.4$ (1), 6.5 (2), 16.0 (3) и 49.0 (4) мВт/мм²

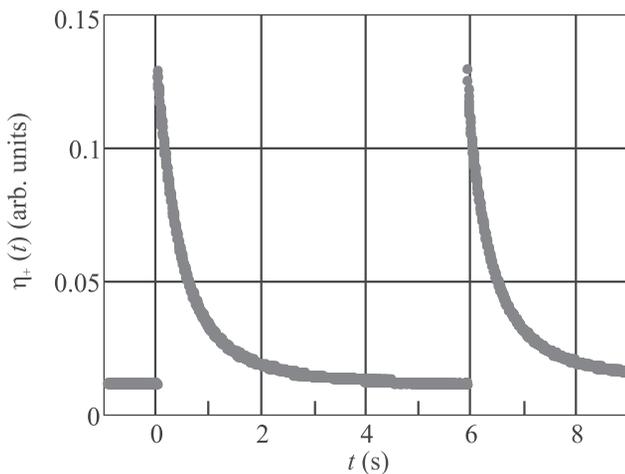


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость дифракционной эффективности в первом порядке при включении приложенного к РДС напряжения $U_0 = +500$ В при $t_{\text{on}} = 0$ с и его выключении при $t_{\text{off}} = 5.916$ с. Для $t < t_{\text{on}}$ и $t > 11$ с наблюдается дифракция с эффективностью $\eta_{dw} = 0.012$ на доменных стенках

вращается к исходному значению $\eta_{dw} = 0.012$, характерному для дифракции на доменных стенках. Для максимальной интенсивности $I_0 = 3.3$ мВт/мм² это происходит за время, составляющее около 5 с. Такое поведение $\eta_+(t)$ свидетельствует о наличии эффекта релаксации именно для возмущений необыкновенного показателя преломления, создаваемых в РДС приложенным электрическим полем.

Характерно, что последующее за релаксацией выключение приложенного внешнего поля при $t =$

$= 5.916$ с приводит к быстрому увеличению эффективности дифракции Брэгга до значения, близкого к $\eta_m \approx 0.13$. Используемые в данном эксперименте длительность развертки 1 с на деление и интервал дискретизации осциллограммы $\Delta t = 4$ мс не позволили сделать более точную оценку времени нарастания дифракционной эффективности, чем $\tau_f < \Delta t$.

Для описания процесса релаксации в условиях экспериментально наблюдаемой дифракции Брэгга с достаточно слабой эффективностью воспользуемся приближенной формулой, следующей из известных соотношений [8, 20]

$$\eta(t) \approx \left(\frac{\pi d}{\lambda \cos \theta_B} \right)^2 |\Delta \dot{n}_m^e(t)|^2, \quad (1)$$

где d – длина взаимодействия и θ_B – угол Брэгга. Комплексную амплитуду возмущений показателя преломления необыкновенной волны $\Delta \dot{n}_m^e(t)$ в РДС будем полагать обусловленной однородным электрическим полем $E(t)$ различной полярности и доменными стенками, с некоторым фазовым сдвигом φ между данными составляющими [21]:

$$\Delta \dot{n}_m^e(t) = \pm \Delta n_{eo}(t) + \Delta n_{dw} \exp(i\varphi). \quad (2)$$

С использованием соотношений, приведенных в [8, 21], и в пренебрежении слабым упругооптическим вкладом, эти возмущения могут быть записаны в следующем виде:

$$\Delta n_{eo}(t) = -\frac{1}{2} n_e^3 r_{33} \frac{F_{eo}}{\delta} |E(t)|, \quad (3)$$

$$\Delta n_{dw} = \frac{1}{2} n_e^3 R_{33} P_S^2 F_{dw}. \quad (4)$$

Здесь n_e – необыкновенный показатель преломления, а r_{33} и R_{33} – электрооптические коэффициенты линейного и квадратичного эффектов кристалла; P_S – модуль вектора спонтанной поляризации; F_{eo} и F_{dw} – модули амплитуд Фурье для первых пространственных гармоник, создаваемых в РДС внешним электрическим полем единичной напряженности (eo) и доменными стенками (dw). Параметр $\delta = 1 + \varepsilon_3^r h_a / h$, где ε_3^r – относительная статическая диэлектрическая проницаемость кристалла, учитывает уменьшение электрического поля в кристалле с толщиной h при наличии некоторого воздушного зазора с эффективной толщиной h_a между его Z -поверхностями и металлическими электродами.

Как следует из соотношений (1)–(4), наблюдаемое экспериментально сравнительно медленное уменьшение дифракционной эффективности (рис. 2 и 3) можно связать с релаксацией напряженности электрического поля в области РДС, освещаемой зондирующим пучком. При этом временная зависимость электрического поля в кристалле может быть получена непосредственно из экспериментальных данных для дифракционной эффективности:

$$E(t) = \frac{2\delta\lambda \cos \theta_B}{n_e^3 r_{33} F_{eo} \pi d} \sqrt{\frac{\eta_-(t) + \eta_+(t)}{2}} - \eta_{dw}. \quad (5)$$

Использование соотношения (5), значения $\eta_{dw} = 0.012$ и экспериментальных данных для $\eta_-(t)$ и $\eta_+(t)$, частично представленных на рис. 2, позволило провести расчет динамики релаксации электрического поля в исследуемой РДС с проводящими стенками, результаты которого показаны точками на рис. 4.

Анализ полученных нормированных временных зависимостей показал, что кинетика релаксации электрического поля в кристалле может быть удовлетворительно описана следующей функцией:

$$E(t, I_0) = E_m \exp\{-a_E(I_0) \ln[1 + b_E(I_0)t]\}, \quad (6)$$

с параметрами a_E и b_E , зависящими от максимальной интенсивности I_0 зондирующего гауссова пучка. На рисунке 4 такие аппроксимирующие функции показаны сплошными кривыми.

Характерно, что на начальном участке релаксации, при $b_E t \ll 1$, она имеет чисто экспоненциальный (максвелловский) характер со скоростью $\gamma_0(I_0) = a_E(I_0)b_E(I_0)$. Использование параметров аппроксимации a_E и b_E , полученных при подгонке кривых (6) под представленные на рис. 4 результаты расчета зависимостей $E(t)/E_m$ из экспериментальных дан-

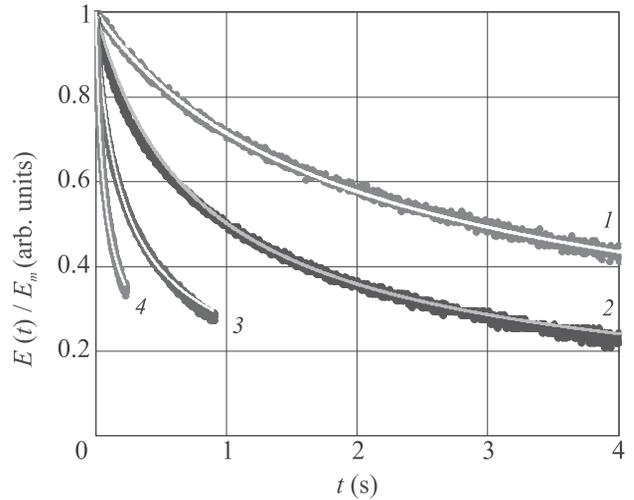


Рис. 4. (Цветной онлайн) Динамика релаксации электрического поля в РДС, рассчитанная по формуле (5) из экспериментальных данных, иллюстрируемых рис. 2 (точки), и ее аппроксимация функцией (6) (сплошные кривые)

ных, позволило найти скорости релаксации электрического поля на начальном участке γ_0 . Эти скорости для четырех значений интенсивности зондирующего пучка показаны точками на рис. 5. Представленная

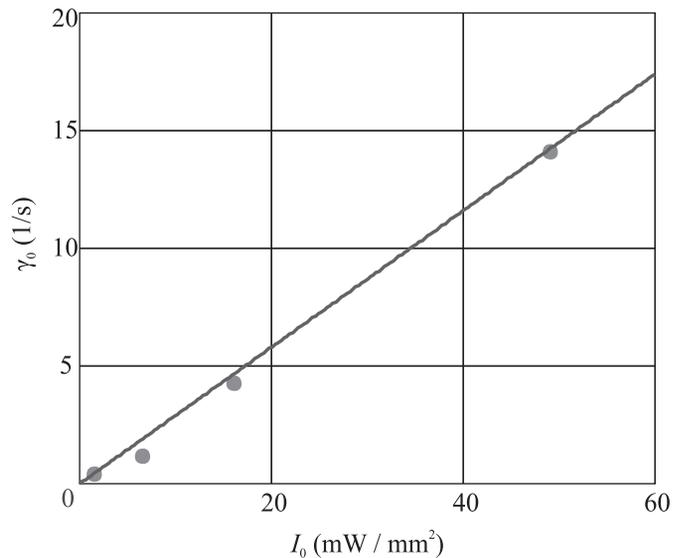


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимость скорости релаксации электрического поля в РДС на начальном участке от интенсивности гауссова зондирующего пучка в максимуме. Точки – расчет из экспериментальных данных, прямая – линейная зависимость с коэффициентом $\beta_E = 0.29 \cdot 10^{-3} \text{ м}^2/\text{Дж}$

здесь же аппроксимирующая линейная зависимость $\gamma_0(I_0) = \beta_E I_0$ получена для $\beta_E = 0.29 \cdot 10^{-3} \text{ м}^2/\text{Дж}$. Отклонения экспериментальных точек от данной ли-

нейной зависимости можно объяснить погрешностями при измерении дифракционных эффективностей $\eta_-(t)$ и $\eta_+(t)$ и при подгонке аппроксимирующих функций (6) под результаты расчета по формуле (5).

Рассматриваемая релаксация напряженности суммарного электрического поля в кристалле $E(t)$ может быть связана с контактными явлениями и с экранировкой внешнего поля $E_{\text{ext}} \sim U_0/h$, обусловленной перераспределением объемного заряда по РДС. Однако для используемых в экспериментах механически прижимаемых к кристаллу с РДС медных электродов инжекционные токи должны отсутствовать. Кроме того, интенсивность зондирующего гауссова пучка на Z -гранях кристалла не превышает $10^{-5}I_0$, что позволяет не учитывать ее влияние на контактные процессы. Другой причиной формирования электрического поля $E_{\text{int}}(t)$ в РДС, компенсирующего поле E_{ext} в области распространения зондирующего пучка, может быть перераспределение зарядов за счет дрейфового и фотовольтаического механизмов в объеме периодически инвертированных доменов [22, 23]. Как известно [24], формирование поля $E_{\text{int}}(t)$ в этом случае происходит со скоростью $\gamma_{\text{ph}} = 1/\tau_{di} = \sigma_{\text{ph}}/\epsilon_{33}$, определяемой временем максвелловской релаксации τ_{di} , где σ_{ph} – фотопроводимость и ϵ_{33} – статическая диэлектрическая проницаемость кристалла. Из результатов измерения фотопроводимости кристалла 4.61% MgO:LiNbO₃ на длине волны $\lambda = 632.8$ нм [25] и значения $\epsilon_{33} = 2.48 \cdot 10^{-10}$ Ф/м [1], для используемого в экспериментах зондирующего пучка с максимальной интенсивностью $I_0 = 49$ мВт/мм², эту скорость можно оценить как $\gamma_{\text{ph}} \sim 10^{-3}$ с⁻¹. Сравнение с приведенными на рис. 5 данными показывает, что наблюдаемая скорость формирования компенсирующего поля на четыре порядка превосходит данную оценку, относящуюся к перераспределению заряда в объеме доменов РДС.

Наблюдаемая экспериментально скорость релаксации может быть объяснена при учете особенностей электронных свойств наклонных доменных стенок РДС. Перераспределение зарядов в области наклонных стенок во внешнем поле обуславливает его экранировку. Перераспределение может быть обусловлено как движением свободных носителей, так и образованием и переориентацией существующих дипольных дефектов. Не затрагивая микроскопических причин, оценим необходимую эффективную проводимость кристалла с наклонными РДС.

В предположении максвелловского характера релаксации суммарного электрического поля $E_{\Sigma}(z, t) = E_{\text{ext}} - E_{\text{int}}(z, t)$ на начальном участке,

усредненная по периоду Λ эффективная проводимость исследуемого кристалла LN с РДС может быть найдена как $\sigma_{\text{eff}}(I_0) = \epsilon_{33}\gamma_0(I_0)$. Из рисунка 3 следует, что при $t \gg 1/\gamma_0$ компенсирующее поле E_{int} становится равным приложенному E_{ext} . При выключении последнего в момент времени t_{off} именно поле E_{int} и определяет быстрое возрастание дифракционной эффективности до значения $\eta(t_{\text{off}}) \approx \eta_m$, наблюдавшегося ранее в момент включения внешнего поля.

Характерно, что эффективная проводимость исследуемого кристалла LN с РДС связана с интенсивностью зондирующего гауссова пучка с $\lambda = 632.8$ нм линейной зависимостью, $\sigma_{\text{eff}}(I_0) = B_{\text{ph}}I_0$, где $B_{\text{ph}} = \epsilon_{33}\beta_E$. Используя полученную выше оценку для β_E , находим значение параметра $B_{\text{ph}} = 7.2 \times 10^{-14}$ Ом⁻¹ Вт⁻¹ м. Для зондирующего пучка с максимальной используемой в экспериментах интенсивностью $I_0 = 49$ мВт/мм² достигаемая эффективная проводимость может быть оценена как $\sigma_{\text{eff}} = 3.5 \cdot 10^{-9}$ Ом⁻¹ м⁻¹. Эта величина более чем на четыре порядка превосходит значение темновой проводимости $\sigma_d \leq 1.9 \cdot 10^{-13}$ Ом⁻¹ м⁻¹ для монокристалла образца MgO:LiNbO₃, приведенное в [26]. Наблюдаемая проводимость РДС имеет фотоиндуцированный характер, линейно возрастая с интенсивностью зондирующего пучка.

Таким образом, при дифракции Брэгга на РДС с доменными стенками, наклонными к полярной оси кристалла 5% MgO:LiNbO₃ на угол $\alpha = \pm 0.31^\circ$, приложение внешнего постоянного электрического поля вначале приводит к быстрому увеличению эффективности, а затем к медленной ее релаксации, скорость которой растет с интенсивностью зондирующего пучка с $\lambda = 632.8$ нм. Эти особенности процесса релаксации можно связать с экранировкой приложенного внешнего электрического поля вследствие фотоиндуцированного изменения проводимости наклонных доменных стенок РДС излучением света с энергией квантов, существенно меньшей, чем ширина запрещенной зоны LN в монокристаллическом состоянии.

Авторы благодарны С. В. Смирнову и А. И. Бруневу за помощь в проведении экспериментов и полезные консультации.

Работа выполнена при финансовой поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Госзадания на 2020–2022 годы (задание FEWM-2020-0038/3).

1. P. Ferrari, S. Grilli, P. DeNatale (editors), *Ferroelectric Crystals for Photonic Applications*, Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg (2014).

2. А. В. Никандров, А. С. Чиркин, Письма в ЖЭТФ **76**, 333 (2002).
3. Г. Д. Лаптев, А. А. Новиков, А. С. Чиркин, Письма в ЖЭТФ **78**, 45 (2003).
4. А. Н. Тучак, Г. Н. Гольцман, Г. Х. Китаева, А. Н. Пенин, С. В. Селиверстов, М. И. Финкель, А. В. Шепелев, П. В. Якунин, Письма в ЖЭТФ **96**, 97 (2012).
5. L. A. Rios, C. E. Minor, N. A. Barboza, and R. S. Cudney, *Opt. Express* **26**, 17591 (2018).
6. T. Ding, Y. Zheng, and X. Chen, *Opt. Lett.* **44**, 1524 (2019).
7. M. Yamada, *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 4010 (2000).
8. I. Mhaouech, V. Coda, G. Montemezzani, M. Chauvet, and L. Guilbert, *Opt. Lett.* **41**, 4174 (2016).
9. G. Catalan, J. Seidel, R. Ramesh, and J. F. Scott, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 119 (2012).
10. V. Ya. Shur, A. R. Akhmatkhanov, and I. S. Baturin, *Appl. Phys. Rev.* **2**, 040604 (2015).
11. P. S. Bednyakov, B. I. Sturman, T. Sluka, A. K. Tagantsev, and P. V. Yudin, *NPJ Computational Materials* **4**, 65 (2018).
12. M. Schröder, X. Chen, A. Haußmann, A. Thiessen, J. Poppe, D. A. Bonnell, and L. M. Eng, *Materials Research Express* **1**, 035012 (2014).
13. M. Schröder, A. Haußmann, A. Thiessen, E. Soergel, T. Woike, and L. M. Eng, *Adv. Funct. Mater.* **22**, 3936 (2012).
14. C. S. Werner, S. J. Herr, K. Buse, B. Sturman, E. Soergel, C. Razzaghi, and I. Breunig, *Sci. Rep.* **7**, 9862 (2017).
15. A. A. Esin, A. R. Akhmatkhanov, and V. Ya. Shur, *Appl. Phys. Lett.* **114**, 092901 (2019).
16. V. Ya. Shur, I. S. Baturin, A. R. Akhmatkhanov, D. S. Chezganov, and A. A. Esin, *Appl. Phys. Lett.* **103**, 102905 (2013).
17. T. R. Volk, R. V. Gainutdinov, and H. H. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 132905 (2017).
18. M. Mohageg, D. V. Strekalov, A. A. Savchenkov, A. B. Matsko, V. S. Ilchenko, and L. Maleki, *Opt. Express* **13**, 3408 (2005).
19. Е. Н. Савченков, С. М. Шандаров, С. В. Смирнов, А. А. Есин, А. Р. Ахматханов, В. Я. Шур, Письма в ЖЭТФ **110**, 165 (2019).
20. H. Kogelnik, *Bell Syst. Tech. J.* **49**, 2909 (1969).
21. S. M. Shandarov, E. N. Savchenkov, M. V. Borodin, A. E. Mandel, A. R. Akhmatkhanov, and V. Ya. Shur, *Ferroelectrics* **542**, 58 (2019).
22. M. Taya, M. C. Bashaw, and M. M. Fejer, *Opt. Lett.* **21**, 857 (1996).
23. B. Sturman, M. Aguilar, F. Agulló-López, V. Pruneri, and P. G. Kazansky, *J. Opt. Soc. Am. B* **14**, 2641 (1997).
24. T. Volk and M. Wöhlecke, *Lithium Niobate: Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching*, Springer-Verlag, Berlin/Heidelberg (2008).
25. M. Aillerie, P. Bourson, M. Mostefa, F. Abdi, and M. D. Fontana, *J. Phys: Conf. Ser.* **416**, 012002 (2013).
26. M. C. Wengler, U. Heinemeyer, E. Soergel, and K. Buse, *J. Appl. Phys.* **98**, 064104 (2005).

Неэкспоненциальная динамика фотолюминесценции неоднородного экситонного ансамбля в монослоях WSe_2

М. А. Акмаев⁺¹⁾, М. В. Кочиев⁺, А. И. Дулебо^{+*}, М. В. Пугачев^{+*}, А. Ю. Кунцевич⁺, В. В. Белых⁺¹⁾

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

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

Поступила в редакцию 12 октября 2020 г.

После переработки 15 октября 2020 г.

Принята к публикации 20 октября 2020 г.

В работе исследована спектрально- и пространственно-временная динамика фотолюминесценции монослоев дихалькогенида переходных металлов WSe_2 , полученных методом механического отслоения на подложке Si/SiO_2 , в широком диапазоне температур и мощностей возбуждения. Показано, что динамика является неэкспоненциальной и описывается обратной временной зависимостью на масштабе времен, превышающих ~ 50 пс после импульса возбуждения. Затухание фотолюминесценции ускоряется при понижении температуры, а также при уменьшении энергии излучающих состояний. Показано, что наблюдаемая динамика не может быть описана бимолекулярным процессом рекомбинации, например, экситон-экситонной аннигиляцией. Представлена модель, описывающая неэкспоненциальную динамику фотолюминесценции на основе представления о разбросе времен излучательной рекомбинации локализованных экситонных состояний в случайном потенциале и дающая хорошее согласие с экспериментальными данными.

DOI: 10.31857/S1234567820220048

1. Введение. Атомарно-тонкие слои дихалькогенидов переходных металлов (ДХПМ) являются новым классом полупроводниковых материалов, которые активно изучаются на протяжении последних лет [1–9]. К ним относятся вещества состава MX_2 , где M – переходный металл ($M = W, Mo$), а X – халькоген ($X = S, Se, Te$). ДХПМ проявляют уникальные свойства при переходе от объемного кристалла к монослою. Многослойные ДХПМ являются непрямозонными полупроводниками, в то время как монослои ДХПМ имеют прямой оптический переход. Экситоны в монослоях ДХПМ имеют энергию связи порядка 200–500 мэВ и являются основным энергетическим состоянием при комнатной температуре (см. [6] для обзора). Уникальные свойства данных соединений, а также возможность создания гетероструктур путем комбинирования монослоев различных материалов [1, 3], делают их перспективными кандидатами для использования в оптоэлектронике [2–4].

Монослои ДХПМ обладают экстремальной двумерностью, которая, в совокупности с резким контрастом диэлектрической проницаемости монослоя и окружающих его сред, приводит к модификации потенциала взаимодействия носителей [10–12]. Также

ДХПМ обладают необычной зонной структурой, для которой характерна спин-долинная связь и сильное спин-орбитальное взаимодействие [13]. По этой причине не всегда удается напрямую экстраполировать опыт, накопленный при изучении традиционных полупроводниковых систем с квантовыми ямами, и до сих пор остается много открытых вопросов в изучении монослоев ДХПМ. Например, не до конца ясны механизмы, отвечающие за динамику фотолюминесценции (ФЛ) и, в частности, экситонную рекомбинацию. В отщепленных монослоях, высаженных непосредственно на подложку, наблюдается неэкспоненциальная динамика затухания ФЛ и фотоиндуцированного отражения/пропускания [14–20]. В перечисленных работах ее связывают с бимолекулярным процессом рекомбинации, в частности, экситон-экситонной аннигиляцией, которая проявляется при больших мощностях накачки на начальном этапе динамики. В то же время в монослое, инкапсулированном между слоями гексагонального нитрида бора ($h-BN$), наблюдается экспоненциальная динамика [21–23], которая связывается с подавлением экситон-экситонной аннигиляции [23].

В настоящей работе мы изучаем динамику ФЛ монослоев WSe_2 , находящихся непосредственно на подложке Si/SiO_2 . Мы наблюдаем неэкспоненциальное затухание ФЛ на большом временном масшта-

¹⁾e-mail: akmaevma@lebedev.ru; belykh@lebedev.ru

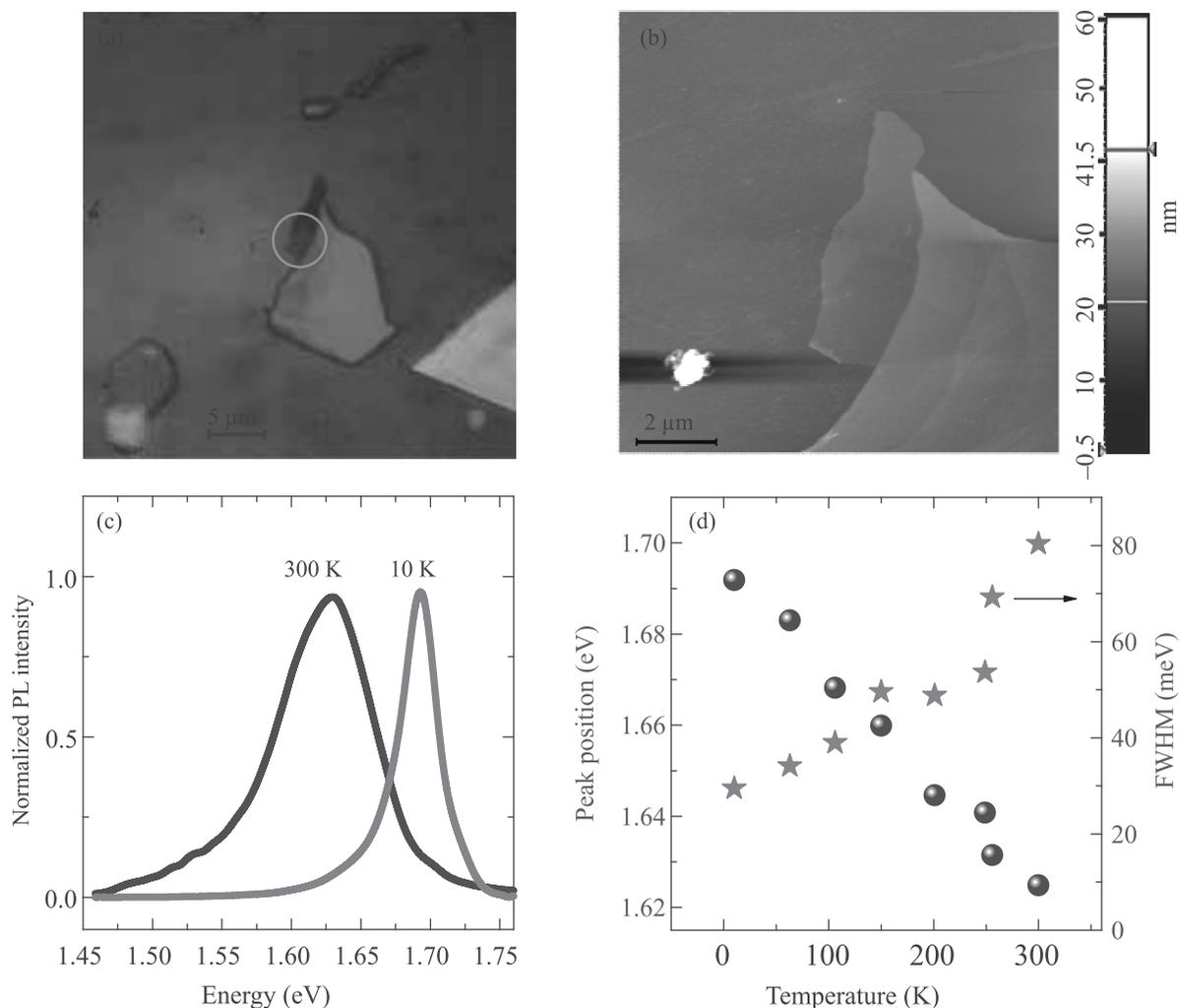


Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Оптическое изображение монослоя WSe_2 . (b) – Изображение монослоя WSe_2 , полученное с помощью АСМ. (c) – Спектры ФЛ монослоя при температурах 10 и 300 К. В спектрах наблюдается ФЛ экситона. Спектры нормированы на максимальное значение. (d) – Зависимость положения максимума экситонной линии (кружки) и ее ширины (звездочки) от температуры

бе, которое хорошо описывается обратной временной зависимостью и ускоряется при понижении температуры. Мы показываем, что, вопреки распространенному мнению, наблюдаемая кинетика не связана с экситон-экситонной аннигиляцией и может быть объяснена излучением ансамбля экситонных состояний, имеющих неоднородное распределение времен затухания ФЛ. При этом время затухания ФЛ экситонного состояния имеет положительную корреляцию (возрастает) с его энергией, что реализуется в ансамбле локализованных экситонов, имеющем разброс длины локализации.

Образцы и методы. Кристаллы WSe_2 расщеплялись при помощи скотча и переносились на Si подложку, покрытую слоем SiO_2 толщиной 285 нм. Предварительно на подложку при помощи опти-

ческой литографии и напыления хрома были нанесены бинарные метки, ускоряющие поиск чешуек в дальнейшем. Первоначальный поиск монослоев осуществлялся с помощью оптического микроскопа по цвету. Топография поверхности кандидатов в монослои исследовалась с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) NT-MDT Solver 47 в полуконтактной моде. Затем образец переносился на установку для изучения стационарной ФЛ. На рисунке 1a и b показаны оптическое изображение и АСМ-топография выбранной чешуйки соответственно. Латеральные размеры данной чешуйки составляют порядка 3 мкм. Высота ступеньки по данным АСМ составляет порядка 1 нм. Спектры ФЛ подтверждают, что данная чешуйка является монослоем.

Основными методами исследования монослоев WSe_2 были стационарная и разрешенная по времени ФЛ в интервале температур 10–300 К. Образец располагался в вакууме на хладопроводе продвинутого гелиевого криостата. Для достижения микронного пространственного разрешения возбуждающее излучение лазера фокусировалось на образце с использованием микрообъектива, который также использовался для сбора ФЛ. При исследованиях стационарной ФЛ возбуждение производилось полупроводниковым непрерывным лазером с длиной волны 457 нм. Спектры ФЛ регистрировались с разрешением 0.5 мэВ с помощью спектрометра с кремниевой ПЗС матрицей, охлаждаемой жидким азотом. При измерениях разрешенной по времени ФЛ использовалось излучение импульсного титан-сапфирового лазера на удвоенной частоте (длина волны 400 нм), с длительностью лазерного импульса – 2 пс. Лазерное излучение фокусировалось на образце в пятно диаметром 2 мкм. Регистрация проводилась с помощью стрик-камеры фирмы Hamamatsu, сопряженной со спектрометром. Для спектрально-временных (пространственно-временных) измерений спектрометр был настроен в первый (нулевой) порядок дифракции. В этих экспериментах достигалось временное разрешение до 5 пс и спектральное разрешение до 1.5 мэВ.

Результаты и обсуждение. На рисунке 1с показаны спектры ФЛ монослоя WSe_2 , полученные при температурах 300 и 10 К. Положение и форма спектральных линий совпадают с литературными данными для экситонной ФЛ [16, 24–30]. Стоит отметить, что в работах [27–30] спектры ФЛ при низких температурах проявляют дополнительные низкоэнергетические линии, которые не наблюдаются у нас, и, по-видимому, связаны с дефектами получаемых слоев. Мы исследуем монослой WSe_2 , находящиеся непосредственно на подложке Si/SiO₂ и не заключенные в h-BN. Вследствие этого даже при низкой температуре в спектре присутствует неоднородное уширение, не позволяющее разделить вклад нейтральных и заряженных экситонов в ФЛ [31]. На присутствие трионной ФЛ указывает несимметричность спектральной линии. На рисунке 1d показана зависимость положения и ширины линии ФЛ от температуры. С ростом температуры наблюдается красный сдвиг и уширение линии, связанные с уменьшением ширины запрещенной зоны и тепловым уширением соответственно.

На рисунке 2а представлена динамика излучения монослоя WSe_2 при различных температурах при его возбуждении лазерными импульсами с длиной вол-

ны 400 нм. Динамика является неэкспоненциальной с ярко выраженным быстрым участком, после которого скорость затухания уменьшается. Более подробно начальный участок динамики изображен на вставке к рис. 2а. Самая быстрая компонента динамики характеризуется временем затухания менее 5 пс. Вклад быстрой компоненты увеличивается при понижении температуры – кинетика затухания ускоряется. Также вклад быстрой компоненты возрастает при уменьшении энергии оптического перехода, на которой происходит регистрация ФЛ как при низкой (рис. 2с), так и при высокой (рис. 2d) температуре.

Динамика излучения при различных мощностях возбуждения представлена на рис. 2b. Качественные изменения динамики при этом трудно различимы – динамика остается неэкспоненциальной как при большой, так и при маленькой мощности возбуждения.

Проверка гипотезы бимолекулярной рекомбинации. Неэкспоненциальная динамика ФЛ при $t \gtrsim 50$ пс хорошо описывается обратной функцией $I(t) \sim 1/(t + t_0)$, где t_0 – константа. Аппроксимация кинетических зависимостей этой функцией изображена на рис. 2b сплошными красными линиями. Для сравнения пунктирной линией показана наилучшая подгонка биэкспоненциальной функцией на том же временном интервале для мощности $P = 3$ мВт, которая, тем не менее, имеет существенные расхождения с экспериментальными данными. Обратная зависимость интенсивности от времени $I(t) \sim 1/(t + t_0)$ наблюдалась во многих работах для монослоев WSe_2 [16, 19, 32], WS_2 [18–20], $MoSe_2$ [15, 17] и MoS_2 [14, 18, 19]. Такая зависимость была объяснена бимолекулярным процессом, требующим участия двух экситонов при рекомбинации. Одним из вариантов такого процесса является экситон-экситонная аннигиляция (оже-рекомбинация), при которой один из экситонов рекомбинирует безызлучательно, передавая энергию второму экситону, который может при этом диссоциировать. Динамика концентрации экситонов n при бимолекулярной рекомбинации описывается уравнением

$$\frac{dn}{dt} = -Cn^2 - \frac{n}{\tau}. \quad (1)$$

Здесь C – константа, определяющая скорость бимолекулярной рекомбинации, а второй (линейный) член описывает излучательную рекомбинацию экситонов с постоянной времени τ так, что наблюдаемая интенсивность $I(t) = n(t)/\tau$. Решение этого уравнения

$$n(t) = [(C\tau + 1/n_0) \exp(t/\tau) - C\tau]^{-1}, \quad (2)$$

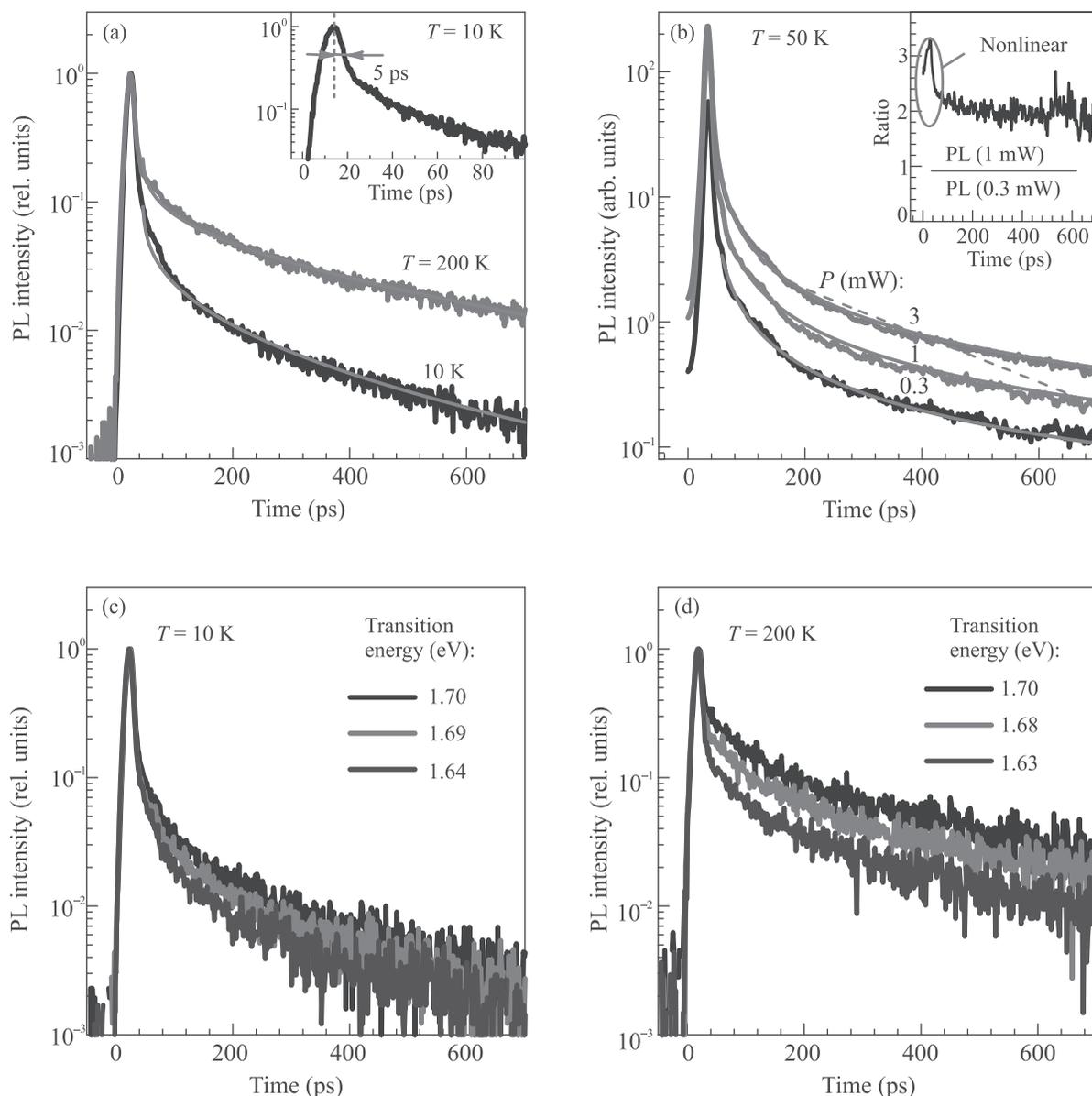


Рис. 2. (Цветной онлайн) Динамика ФЛ монослоев WSe₂. (а) – Динамика ФЛ при различных температурах и мощности возбуждения $P = 1$ мВт. Красные кривые показывают теоретический расчет в соответствии с ур. (5). Во вставке показан начальный участок динамики. (б) – Динамика при различных мощностях возбуждения и $T = 50$ К. Во вставке показана временная зависимость отношения интенсивностей при мощностях возбуждения 1 и 0.3 мВт. (с), (d) – Динамика ФЛ при различных энергиях оптического перехода. Зависимости на панелях (а), (с) и (d) нормированы на максимальное значение

где n_0 – начальная концентрация экситонов. При доминирующем вкладе бимолекулярного процесса, когда $t \ll \tau$ и $Cn_0\tau \gg 1$, имеет место обратная временная зависимость $n(t) \approx n_0/[1 + Cn_0t]$, тогда как в пределе $t \gg \tau$ имеет место экспоненциальное затухание концентрации экситонов $n(t) = (C\tau + 1/n_0)^{-1} \exp(-t/\tau)$. Отметим, что мы не наблюдаем выход на экспоненциальное затухание вплоть до времен $t = 600$ пс. Таким образом, если действительно

доминирует бимолекулярный процесс, то мы находимся в режиме $t \ll \tau$. При этом отношение интенсивностей для двух различных мощностей возбуждения и, соответственно, начальных концентраций экситонов n_0 и \tilde{n}_0 должно убывать со временем от значения \tilde{n}_0/n_0 до 1: $\tilde{I}(t)/I(t) = 1 + (\tilde{n}_0/n_0 - 1)/(C\tilde{n}_0t + 1)$. В наших экспериментах (вставка на рис. 2b) при изменении мощности возбуждения в 3 раза отношение кинетических зависимостей меняется лишь на на-

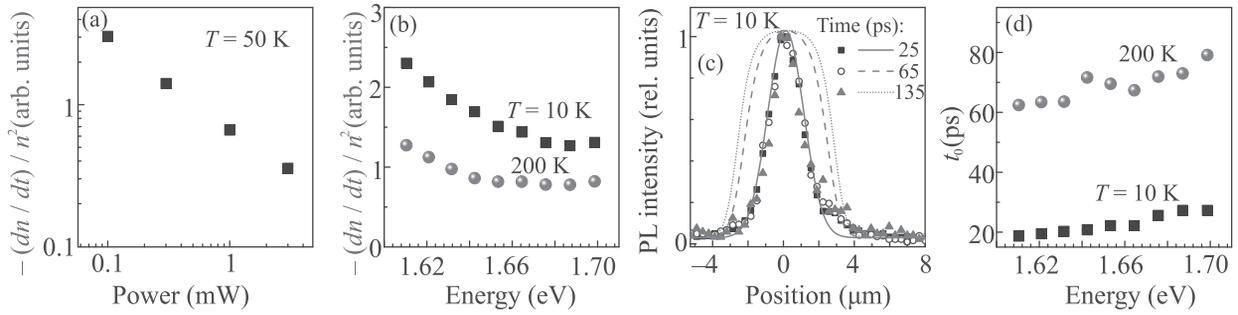


Рис. 3. (Цветной онлайн) (a)–(c) Проверка гипотезы бимолекулярной рекомбинации. (a) – Зависимость ожидаемого коэффициента бимолекулярной рекомбинации $C = -(dn/dt)/n^2$ от мощности возбуждения. $T = 50$ K. (b) – Зависимость ожидаемого коэффициента бимолекулярной рекомбинации от энергии излучения при двух различных температурах. (c) – Профили пятна ФЛ в различные моменты времени после импульса возбуждения, нормированные на максимальное значение: измерения (символы) и расчет (линии). $T = 10$ K. (d) – Зависимость эффективного времени динамики ФЛ t_0 от энергии излучения при различных температурах

чальном этапе кинетики ($t \lesssim 50$ пс), и постоянно при больших временах, на которых интенсивность демонстрирует обратную временную зависимость. Из аппроксимаций экспериментальных кривых обратной временной зависимостью мы можем определить ожидаемый коэффициент бимолекулярной рекомбинации $C = -(dn/dt)/n^2$. Его зависимость от мощности возбуждения представлена на рис. 3а. Коэффициент C представлен в произвольных единицах, а физический смысл имеет лишь его относительное изменение в различных экспериментах. Увеличение мощности возбуждения эквивалентно увеличению начальной концентрации и не должно сопровождаться существенным изменением коэффициента C . Наши же измерения показывают, что $C \sim 1/P$. На рисунке 3б представлена зависимость C от энергии оптического перехода при двух различных температурах. Здесь мы также сталкиваемся с противоречиями: вопреки нашим наблюдениям увеличение энергии или температуры должно приводить к делокализации экситонов и увеличению эффективности бимолекулярного процесса, то есть к росту C [33]. Наконец, при бимолекулярной рекомбинации должно существенно меняться пространственное распределение экситонов. Области с изначально большей концентрацией экситонов должны опустошаться быстрее, что должно приводить к эффективному уширению пространственного распределения экситонов и уширению пятна ФЛ. Диффузия экситонов должна лишь усиливать это уширение. Измеренные и рассчитанные пространственные распределения ФЛ, нормированные на максимум, в различные моменты времени показаны на рис. 3с. Не наблюдается сколько-нибудь значительного роста ширины пятна ФЛ, тогда как расчет предсказывает существенное уширение, которое,

тем не менее, должно быть ограничено размером монослоя. Таким образом, в нашем случае, динамика затухания интенсивности при $t \gtrsim 50$ пс, в частности, обратная зависимость от времени не может быть объяснена бимолекулярным процессом и, по-видимому, имеет другую природу.

Линейная модель неэкспоненциальной динамики. Независимость характера динамики ФЛ при $t \gtrsim 50$ пс от мощности возбуждения указывает на линейный характер уравнений, описывающих динамику концентрации экситонов. В этом случае неэкспоненциальный характер затухания интенсивности со временем связан с тем, что мы наблюдаем интенсивность неоднородного ансамбля состояний, каждое из которых характеризуется экспоненциальным характером затухания со временем τ , различным для разных состояний. Таким образом,

$$I(t) = \int_0^{\infty} \frac{n_0(\tau)}{\tau} \exp(-t/\tau) d\tau, \quad (3)$$

где $n_0(\tau) d\tau$ – концентрация экситонов в момент времени $t = 0$ в состояниях, характеризующихся временем затухания τ в интервале $d\tau$. В частности, для зависимости $I(t) \propto 1/(t + t_0)$, близкой к экспериментальной, функция $n_0(\tau)$ должна иметь вид $n_0(\tau) \propto n_0 \exp(-t_0/\tau)/\tau$, причем время t_0 соответствует максимуму распределения $n_0(\tau)$ и может считаться эффективным временем динамики ФЛ. Зависимость этого времени от энергии излучающего состояния при различных температурах представлена на рис. 3d и подтверждает вывод о замедлении динамики при увеличении энергии излучающих состояний и температуры.

Неэкспоненциальная динамика, связанная с неоднородностью времени рекомбинации, встречается во

многих системах [34–42]. В подавляющем большинстве систем неэкспоненциальная динамика связана с необходимостью туннелирования электронов к центрам рекомбинации или с донорно-акцепторной рекомбинацией. В этом случае увеличение температуры должно приводить к ускорению рекомбинации, что противоречит нашим наблюдениям. Отметим, что замедление динамики ФЛ при увеличении температуры было также отмечено и в других работах для WSe₂ [43, 44], MoS₂ [45] и MoSe₂ [44] и, по-видимому, имеет общий характер для монослоев ДХПМ.

Прежде чем перейти к определению характера распределения времен τ и поиску $I(t)$, сделаем несколько замечаний о природе излучающих состояний. Основное состояние экситона в монослое WSe₂ – темное, тогда как светлое состояние находится на ~ 40 мэВ выше по энергии [43, 46]. В работе [46] было показано, что основное состояние тем не менее может излучать под ненулевым углом к нормали. По-видимому, именно это состояние определяет динамику ФЛ, по крайней мере, при низких температурах. Существенную роль в динамике ФЛ монослоев WSe₂ при низких температурах играют трионные состояния [44], которые характеризуются короткими временами затухания ФЛ. Также вклад в ФЛ монослоя WSe₂ могут давать биэкситонные состояния. В нашем случае они не дают существенного вклада в динамику при $t \gtrsim 50$ пс (рис. 2b), поскольку соответствующая интенсивность квадратична по мощности возбуждения.

Характерное время рекомбинации нейтральных экситонов в ДХПМ τ_0 достаточно мало [33]. Они могут излучать, если их полный волновой вектор лежит в пределах светового конуса $|k| < \omega/c$, где ω – частота светового кванта, и, соответственно, кинетическая энергия близка к 0. В тепловом равновесии энергия экситонов распределена в интервале $\sim k_B T$, а время затухания полной экситонной концентрации может быть оценено как $\tau \sim \tau_0 k_B T / (\hbar^2 \omega^2 / 2mc^2) \gg \tau_0$ [47], где $m \approx 0.8m_0$ – масса экситона [22], m_0 – масса свободного электрона. Это объясняет достаточно длинную динамику ФЛ и увеличение характерного времени затухания ФЛ с увеличением температуры. В нашем случае неинкапсулированного WSe₂ на подложке Si/SiO₂ существует неоднородность, связанная с флуктуациями потенциала, в котором движутся экситоны, которая проявляется в уширении спектра ФЛ. Флуктуации потенциала приводят к локализации экситонов и размытию экситонных состояний в k -пространстве $\delta k^2 \sim 1/L^2$, где L – характерная длина локализации (рис. 4). При этом время излучения локализованного состояния $\tau \sim \tau_0 c^2 / \omega^2 L^2$.

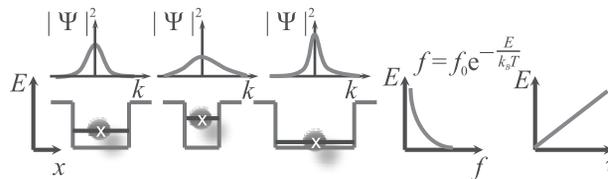


Рис. 4. (Цветной онлайн) Схематическое изображение экситонов в локализуемом потенциале различной протяженности. При уменьшении протяженности потенциала возрастает энергия экситона, ширина импульсного распределения (верхняя часть рисунка) и время излучательной рекомбинации τ , но уменьшается заселенность таких состояний f

Если предположить, что неоднородное уширение в спектре связано с разбросом длин локализации L , то энергия локализованного состояния (отсчитанная от дна потенциальной ямы) $E \sim \hbar^2 / 2mL^2 \sim (\tau / \tau_0) (\hbar \omega)^2 / 2mc^2$. Таким образом, для неоднородной системы, в предположении, что неоднородность связана с разбросом размеров локализуемого потенциала, характерное время рекомбинации экситона составит

$$\tau / \tau_0 \sim \alpha E, \tag{4}$$

где $\alpha = 2mc^2 / (\hbar \omega)^2 \approx 400$ мэВ⁻¹. Учет не только разброса размера локализуемого потенциала, но и разброса его глубины приведет к разбросу значений τ , соответствующих одной и той же энергии в спектре, однако не изменит общей тенденции (4). Для трионных состояний отсутствует требование близости к нулю общего волнового вектора триона, так как при рекомбинации импульс передается оставшемуся носителю. По этой причине скорость затухания трионной ФЛ достаточно высока [44], и трионы не вносят большого вклада в динамику при $t \gtrsim 50$ пс. В любом случае, учет трионных состояний, обладающих малым временем затухания ФЛ и находящихся ниже по энергии вписывается в тенденцию (4) увеличения времени τ с энергией. Отметим, что увеличение характерного времени затухания ФЛ с увеличением энергии излучающих состояний подтверждается экспериментальными данными (рис. 2c, d).

Найдем полную интенсивность ФЛ, просуммировав интенсивность излучения отдельных состояний $f_0 \exp(-E/k_B T) \exp(-t/\tau) / \tau$, заселенность которых распределена по больцмановскому закону $f_0 \exp(-E/k_B T)$ в предположении наличия теплового равновесия:

$$I(t) = \int_0^\infty \frac{f_0}{\tau} \exp\left(-\frac{E}{k_B T}\right) \exp\left(-\frac{t}{\tau}\right) g(E) dE =$$

$$= A \int_0^\infty \exp\left(-\frac{\tau}{\alpha \tau_0 k_B T} - \frac{t}{\tau}\right) \frac{d\tau}{\tau}, \quad (5)$$

где использовано $\tau/\tau_0 = \alpha E$, f_0 – константа, определяющая заселенность, $g(E)$ – плотность состояний, которую для простоты можно считать постоянной, аналогично свободным состояниям в двумерной системе, $A = f_0 g / \alpha \tau_0$.

На рисунке 2а красными линиями показан результат расчета интенсивности в соответствии с ур. (5). Сопоставление расчета с экспериментальными данными проводится, начиная с момента времени $t = 50$ пс, когда в системе можно ожидать установления теплового равновесия и затухания быстрых нелинейных процессов, в том числе связанных с биэкситонами и бимолекулярной рекомбинацией. В расчете используется значение $\tau_0 = 1.3$ пс, находящееся в разумном соответствии с имеющимися экспериментальными данными о времени рекомбинации экситона с нулевым волновым вектором [33]. Отметим хорошее соответствие расчетных кривых экспериментальным данным. В частности, расчет дает неэкспоненциальную динамику, замедляющуюся со временем и близкую к $1/(t + t_0)$, а также воспроизводит зависимость динамики от температуры.

Более полный анализ должен включать в себя учет всех возможных экситонных состояний с различными комбинациями спина электрона и дырки, экситонов, состоящих из электрона и дырки, находящихся в различных долинах [46, 48, 49], а также трионных состояний [44]. При этом экситоны, имеющие различную спиновую или долинную структуру, могут не достигать между собой теплового равновесия, что еще более усложняет анализ. Тем не менее, для объяснения наблюдаемой в эксперименте при $t \gtrsim 50$ пс долгоживущей неэкспоненциальной динамики фотолюминесценции, замедляющейся со временем, не зависящей от мощности возбуждения и ускоряющейся при понижении температуры необходимо выполнение лишь 2-х условий: (i) наблюдаемая ФЛ обусловлена совокупностью излучающих состояний, характеризующихся различным временем затухания ФЛ τ ; (ii) имеет место положительная корреляция между временем излучения состояния τ и энергией этого состояния E . При этом не обязательна постоянная плотность излучающих состояний и линейная, или даже однозначная, зависимость $\tau(E)$. На более коротком временном масштабе ($t \lesssim 50$ пс) существенный вклад в динамику могут давать также нелиней-

ные процессы, такие как бимолекулярная рекомбинация, как отмечалось в работах [14, 17, 18, 32].

Авторы благодарны С. Н. Николаеву за предоставление кристаллов WSe₂ и М. М. Глазову и М. Л. Скорикову за плодотворные обсуждения и ценные советы.

Работа выполнена при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (грант 18-32-20202).

Подготовка подложек, перенос и локализация монослойных образцов выполнены в Центре коллективного пользования ФИАН.

1. A. K. Geim and I. V. Grigorieva, *Nature* **499**, 419 (2013).
2. Q. H. Wang, K. Kalantar-Zadeh, A. Kis, J. N. Coleman, and M. S. Strano, *Nat. Nanotechnol.* **7**, 699 (2012).
3. Y. Liu, N. O. Weiss, X. Duan, H.-C. Cheng, Y. Huang, and X. Duan, *Nat. Rev. Mater.* **1**, 16042 (2016).
4. K. F. Mak and J. Shan, *Nature Photon.* **10**, 216 (2016).
5. S. Manzeli, D. Ovchinnikov, D. Pasquier, O. V. Yazyev, and A. Kis, *Nat. Rev. Mater.* **2**, 17033 (2017).
6. G. Wang, A. Chernikov, M. M. Glazov, T. F. Heinz, X. Marie, T. Amand, and B. Urbaszek, *Rev. Mod. Phys.* **90**, 021001 (2018).
7. L. A. Chernozatonskii and A. A. Artyukh, *Uspekhi Fiz. Nauk* **188**, 3 (2018).
8. E. E. Vdovin and Y. N. Khanin, *JETP Lett.* **108**, 641 (2018).
9. P. L. Pekh, P. V. Ratnikov, and A. P. Silin, *JETP Lett.* **111**, 90 (2020).
10. A. Chernikov, T. C. Berkelbach, H. M. Hill, A. Rigosi, Y. Li, O. B. Aslan, D. R. Reichman, M. S. Hybertsen, and T. F. Heinz, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 076802 (2014).
11. C. Robert, M. A. Semina, F. Cadiz, M. Manca, E. Courtade, T. Taniguchi, K. Watanabe, H. Cai, S. Tongay, B. Lassagne, P. Renucci, T. Amand, X. Marie, M. M. Glazov, and B. Urbaszek, *Phys. Rev. Mater.* **2**, 011001(R) (2018).
12. A. I. Prazdnichnykh, M. M. Glazov, L. Ren, C. Robert, B. Urbaszek, and X. Marie, arXiv:2010.01352 (2020).
13. M. M. Glazov, E. L. Ivchenko, G. Wang, T. Amand, X. Marie, B. Urbaszek, and B. L. Liu, *Phys. Stat. Sol.* **252**, 2349 (2015).
14. D. Sun, Y. Rao, G. A. Reider, G. Chen, Y. You, L. Brézin, A. R. Harutyunyan, and T. F. Heinz, *Nano Lett.* **14**, 5625 (2014).
15. N. Kumar, Q. Cui, F. Ceballos, D. He, Y. Wang, and H. Zhao, *Phys. Rev. B* **89**, 125427 (2014).
16. S. Mouri, Y. Miyauchi, M. Toh, W. Zhao, G. Eda, and K. Matsuda, *Phys. Rev. B* **90**, 155449 (2014).
17. M. J. Shin, D. H. Kim, and D. Lim, *J. Korean Phys. Soc.* **65**, 2077 (2014).

18. Y. Yu, Y. Yu, C. Xu, A. Barrette, K. Gundogdu, and L. Cao, *Phys. Rev. B* **93**, 201111 (2016).
19. G. Plechinger, P. Nagler, A. Arora, R. Schmidt, A. Chernikov, J. Lupton, R. Bratschitsch, C. Schüller, and T. Korn, *Phys. Stat. Sol. – Rapid Res. Lett.* **11**, 1700131 (2017).
20. Y. Lee, G. Ghimire, S. Roy, Y. Kim, C. Seo, A. K. Sood, J. I. Jang, and J. Kim, *ACS Photonics* **5**, 2904 (2018).
21. C. Robert, T. Amand, F. Cadiz, D. Lagarde, E. Courtade, M. Manca, T. Taniguchi, K. Watanabe, B. Urbaszek, and X. Marie, *Phys. Rev. B* **96**, 155423 (2017).
22. F. Cadiz, C. Robert, E. Courtade, M. Manca, L. Martinelli, T. Taniguchi, K. Watanabe, T. Amand, A. C. H. Rowe, D. Paget, B. Urbaszek, and X. Marie, *Appl. Phys. Lett.* **112**, 152106 (2018).
23. Y. Hoshi, T. Kuroda, M. Okada, R. Moriya, S. Masubuchi, K. Watanabe, T. Taniguchi, R. Kitaura, and T. Machida, *Phys. Rev. B* **95**, 241403 (2017).
24. W. Zhao, Z. Ghorannevis, L. Chu, M. Toh, C. Kloc, P.-H. Tan, and G. Eda, *ACS Nano* **7**, 791 (2013).
25. H. Zeng, G.-B. Liu, J. Dai, Y. Yan, B. Zhu, R. He, L. Xie, S. Xu, X. Chen, W. Yao, and X. Cui, *Sci. Rep.* **3**, 1608 (2013).
26. P. Tonndorf, R. Schmidt, P. Böttger, X. Zhang, J. Börner, A. Liebig, M. Albrecht, C. Kloc, O. Gordan, D. R. T. Zahn, S. M. de Vasconcellos, and R. Bratschitsch, *Opt. Express* **21**, 4908 (2013).
27. T. Yan, X. Qiao, X. Liu, P. Tan, and X. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **105**, 101901 (2014).
28. J. Huang, T. B. Hoang, and M. H. Mikkelsen, *Sci. Rep.* **6**, 22414 (2016).
29. J. Jadczyk, J. Kutrowska-Girzycka, P. Kapuściński, Y. S. Huang, A. Wójs, and L. Bryja, *Nanotechnology* **28**, 395702 (2017).
30. A. Arora, M. Koperski, K. Nogajewski, J. Marcus, C. Faugeras, and M. Potemski, *Nanoscale* **7**, 10421 (2015).
31. F. Cadiz, E. Courtade, C. Robert et al. (Collaboration), *Phys. Rev. X* **7**, 21026 (2017).
32. J. Wang, Y. Guo, Y. Huang, H. Luo, X. Zhou, C. Gu, and B. Liu, *Appl. Phys. Lett.* **115**, 131902 (2019).
33. C. Robert, D. Lagarde, F. Cadiz, G. Wang, B. Lassagne, T. Amand, A. Balocchi, P. Renucci, S. Tongay, B. Urbaszek, and X. Marie, *Phys. Rev. B* **93**, 205423 (2016).
34. D. J. Huntley, *J. Phys. Condens. Matter* **18**, 1359 (2006).
35. J. C. Phillips, *Rep. Prog. Phys.* **59**, 1133 (1996).
36. A. K. Jonscher and A. de Polignac, *J. Phys. C Solid State Phys.* **17**, 6493 (1984).
37. A. M. Gilinsky and K. S. Zhuravlev, *Appl. Phys. Lett.* **79**, 3455 (2001).
38. V. Cardin, L. I. Dion-Bertrand, P. Grégoire, H. P. T. Nguyen, M. Sakowicz, Z. Mi, C. Silva, and R. Leonelli, *Nanotechnology* **24**, 045702 (2013).
39. A. Morel, P. Lefebvre, S. Kalliakos, T. Taliercio, T. Bretagnon, and B. Gil, *Phys. Rev. B* **68**, 045331 (2003).
40. C.-N. Brosseau, M. Perrin, C. Silva, and R. Leonelli, *Phys. Rev. B* **82**, 085305 (2010).
41. T. Bartel, M. Dworzak, M. Strassburg, A. Hoffmann, A. Strittmatter, and D. Bimberg, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 1946 (2004).
42. В. С. Кривобок, А. В. Колобов, С. Е. Димитриева, Д. Ф. Аминев, С. И. Ченцов, С. Н. Николаев, В. П. Марговицкий, Е. Е. Онищенко, *Письма в ЖЭТФ* **112**, 501 (2020).
43. X.-X. Zhang, Y. You, S. Y. F. Zhao, and T. F. Heinz, *Phys. Rev. Lett.* **115**, 257403 (2015).
44. T. Godde, D. Schmidt, J. Schmutzler, M. Aßmann, J. Debus, F. Withers, E. M. Alexeev, O. Del Pozo-Zamudio, O. V. Skrypka, K. S. Novoselov, M. Bayer, and A. I. Tartakovskii, *Phys. Rev. B* **94**, 165301 (2016).
45. G. Moody, J. Schaibley, and X. Xu, *J. Opt. Soc. Am. B* **33**, C39 (2016).
46. G. Wang, C. Robert, M. M. Glazov, F. Cadiz, E. Courtade, T. Amand, D. Lagarde, T. Taniguchi, K. Watanabe, B. Urbaszek, and X. Marie, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 047401 (2017).
47. V. V. Belykh and M. V. Kochiev, *Phys. Rev. B* **92**, 045307 (2015).
48. Z. Li, T. Wang, C. Jin et al. (Collaboration), *ACS Nano* **13**, 14107 (2019).
49. G.-H. Peng, P.-Y. Lo, W.-H. Li, Y.-C. Huang, Y.-H. Chen, C.-H. Lee, C.-K. Yang, and S.-J. Cheng, *Nano Lett.* **19**, 2299 (2019).

Высокодобротные диэлектрические Ми-резонансные наноструктуры (Мини-обзор)

П. Тонкаев⁺¹⁾, Ю. Кившарь^{+*1)}

⁺ Университет ИТМО, 197101 С.-Петербург, Россия

^{*}Nonlinear Physics Centre, Australian National University, Canberra ACT 2601, Australia

Поступила в редакцию 14 октября 2020 г.

После переработки 19 октября 2020 г.

Принята к публикации 19 октября 2020 г.

Новые перспективные технологии, обеспечивающие создание высокопроизводительных линий оптической связи, сверхбыстрых вычислительных устройств и компактных биосенсоров, как ожидается, будут связаны с перестраиваемыми оптическими схемами высокой плотности функциональных элементов, разрабатываемых в рамках современной нанопотоники. Продолжительное время плазмоника рассматривалась как безальтернативная технологическая платформа для нано-оптики, однако стремительно развивающееся новое направление, получившее название *резонансная метафотоника*, позволяет создавать энергоэффективные структуры нано-оптики, функционал которых обеспечен резонансами Ми, возбуждающимися в отдельных элементах, сделанных из материалов с высоким значением диэлектрической проницаемости. Целью настоящего мини-обзора является освещение новых тенденций в физике высокодобротных диэлектрических наноструктур для эффективного управления светом в пространстве и времени благодаря использованию мультипольных резонансов и связанных состояний в континууме. Кроме этого, обсуждается возможность практического применения фундаментальных результатов данного направления для нелинейной оптики, нанолазеров, субволновых сенсоров и волноводов.

DOI: 10.31857/S123456782022005X

Введение. Нанопотоника часто рассматривается как особый раздел оптики, изучающий поведение света на наномасштабах, включая взаимодействие субволновых объектов со светом. Для многих приложений нанопотоники, в том числе для создания компактных оптических схем и сетей, необходимо минимизировать геометрические размеры фотонных элементов, и поэтому традиционно нанопотоника основывалась на металлических компонентах, которые переносят и фокусируют свет с помощью поверхностных плазмонных поляритонов, что позволяет преодолеть дифракционный предел [1]. Однако, как известно, плазмонные компоненты страдают от сильных диссипативных потерь и нагрева. Недавно возникшая новая область – *диэлектрическая резонансная метафотоника* [2] (также называемая “*Mie-tronics*” [3]), направлена на управление оптически-индуцированными электрическими и магнитными резонансами Ми в диэлектрических наноструктурах с высоким показателем преломления. Уникальные преимущества таких диэлектрических резонансных наноструктур по сравнению с их ме-

таллическими аналогами – это низкие диссипативные потери, сильное усиление как электрического, так и магнитного полей, которые делают их конкурентоспособной альтернативой для плазмоники оптических наноантенн, биосенсоров и метаповерхностей.

Диэлектрические наноантенны с высоким показателем преломления, поддерживающие мультипольные резонансы Ми, представляют собой новый тип структурных элементов метаматериалов для генерации, управления и модуляции света. Комбинируя как электрические, так и магнитные мультипольные моды, можно не только изменять диаграммы направленности излучения в дальней зоне, но также локализовать электромагнитную энергию в открытых резонаторах, используя физику связанных состояний в континууме (ССК) для достижения деструктивной интерференции двух (или более) утекающих мод [4, 5]. Оптические резонансы Ми в наноантеннах можно охарактеризовать средним временем жизни захваченного света, количественно определяемого значением добротности. Известно, что дипольные моды Ми низшего порядка имеют относительно низкую добротность – порядка десяти. Изменение параметров резонатора, или объединение резонаторов в плоскую геометрию метаповерхностей, позволяет

¹⁾e-mail: pavel.tonkaev@metalab.ifmo.ru;
yuri.kivshar@anu.edu.au

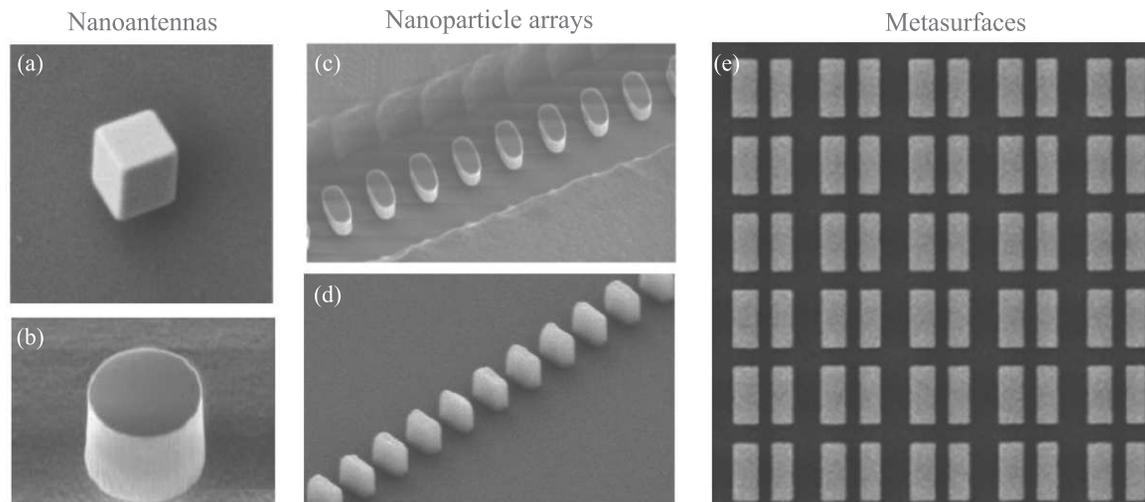


Рис. 1. Основные типы субволновых диэлектрических структур, представленные СЭМ-изображениями изготовленных образцов. (a), (b) – Кубические и цилиндрические оптические наноантенны для лазерной генерации и генерации высших гармоник; (c), (d) – цепочки диэлектрических наночастиц для волноводов, передающих медленный свет; и (e) – диэлектрические метаповерхности, поддерживающие ССК резонансы. Изображения взяты из работ [6–10]

добиться гораздо более высоких значений добротности.

Этот мини-обзор призван осветить некоторые недавние достижения в области *диэлектрической Ми-резонансной метафотоники*, обусловленные разработкой диэлектрических структур с высокой добротностью для нелинейной нанофотоники, лазерной генерации на наномасштабах и создания эффективных датчиков света.

На рисунке 1a–e показаны примеры СЭМ-изображений (воспроизведены из работ [6–10]) для нескольких типов диэлектрических структур. В частности, субволновые оптические наноантенны, изготовленные из диэлектрических материалов с высоким показателем преломления, могут иметь различную форму, например, куба и цилиндра (см. рис. 1a, b). Они также поддерживают мультипольные электрические и магнитные резонансы Ми, которые можно гибридизировать для реализации квази-ССК резонансов, известных также как суперрезонансные состояния [5], с высокими значениями добротности. Ниже будет обсуждено как такие резонансные наноантенны Ми могут быть использованы для генерации второй гармоники, а также для создания уникальных наноразмерных неплазмонных лазеров, работающих при комнатной температуре. На рисунке 1c, d представлены массивы диэлектрических наночастиц для волноводов, передающих медленный

свет. Наконец, создание метаповерхности на основе субволновых резонаторов (см. рис. 1e) позволяет использовать коллективные резонансы, связанные с физикой ССК, и, таким образом, создавать новую платформу для нелинейной оптики.

Важно отметить, что различные степени свободы и геометрии могут быть использованы для проектирования добротности резонансных диэлектрических структур, а также для создания волноводов, поддерживающих распространение так называемого медленного света, на основе резонансов Ми. Возможность получения резонансов с высокой добротностью для метаповерхностей открывает новые пути для создания компактных оптических устройств таких, как, например, биодатчики.

Нелинейные наноантенны. Субволновые диэлектрические наноантенны, изготовленные из материалов с высоким показателем преломления, недавно нашли свое применение в нанофотонике [2, 7, 11]. Однако усиление эффектов ближнего поля для отдельных субволновых резонаторов ограничено низкой добротностью основных резонансов, определяющих оптический отклик. В последних исследованиях был предложен новый подход [7] для получения высокочастотных резонансов в индивидуальных субволновых резонаторах в режиме *суперрезонатора*, используя физику безызлучательных состояний – оптических *связанных состояний в конти-*

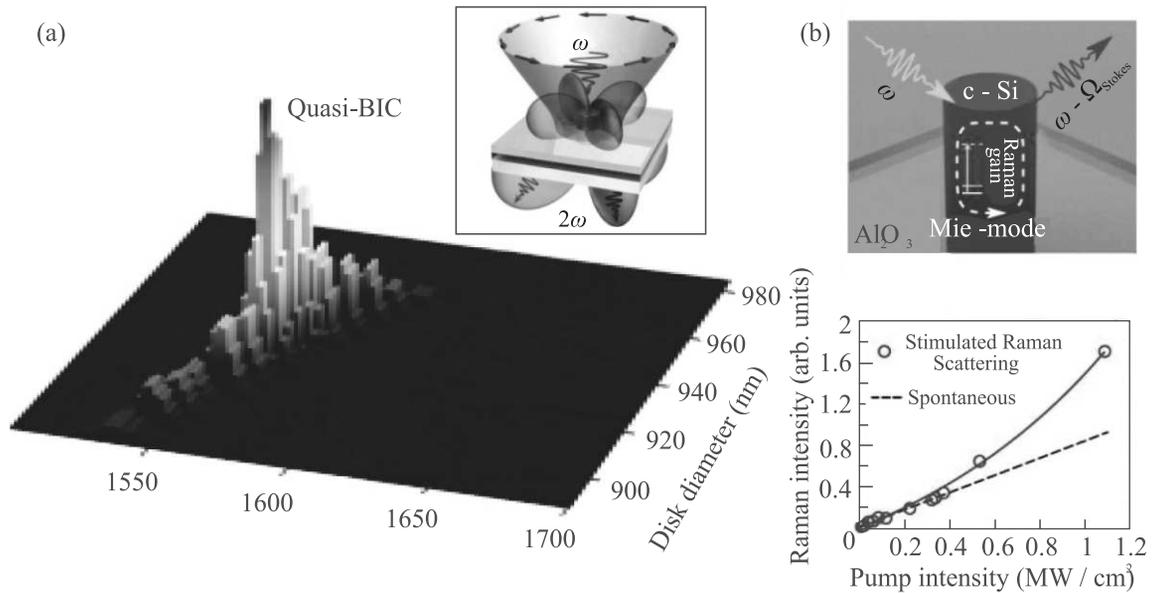


Рис. 2. (Цветной онлайн) Примеры нелинейных эффектов усиленных резонансами Ми. (а) – Генерация второй гармоники за счет квази-ССК резонанса. (б) – Вынужденное комбинационное рассеяние света на c-Si нанопильдрах усиленное резонансом Ми низкого порядка. Изображения взяты из [7, 11]

нууме (ССК) [4, 5]. Изучению режима суперрезонатора было посвящено много работ, но экспериментально пронаблюдать его удалось только в этом году. Кошелев и соавторы [7] впервые экспериментально реализовали суперрезонансные моды в отдельных субволновых диэлектрических резонаторах, а также продемонстрировали рекордно высокую эффективность генерации второй гармоники. Исследование показало, что суперрезонансные моды образуются из-за сильной связи двух вытекающих мод, возбуждаемых одновременно в диэлектрическом резонаторе, которые деструктивно интерферируют, что приводит к сильному подавлению радиационных потерь. Эти наблюдения подтвердили, что моды суперрезонатора обусловлены физикой ССК. Результаты работы открывают новые возможности для субволновой диэлектрической метафотоники и нелинейной нанофотоники.

В частности, Кошелев и соавторы [7] рассмотрели цилиндрические резонаторы высотой 635 нм, изготовленные из AlGaAs ($\epsilon = 11$) и помещенные на кремневую подложку с дополнительным высоколегированным слоем ИТО толщиной 300 нм. Этот слой обеспечивает дополнительное увеличение добротности за счет взаимодействия между резонатором и подложкой. Чтобы обнаружить суперрезонансную моду, авторы изменяли диаметр резонатора от 890 до 980 нм, чтобы найти сильное взаимодействие между парой утекающих резонансных мод

Ми [7]. Для эффективного возбуждения авторы использовали сильно сфокусированный азимутально-поляризованный векторный пучок с длиной волны от 1500 до 1700 нм. Измеренная добротность составила около 190, что более, чем на порядок выше, чем для обычного магнитного дипольного резонанса Ми. Такое высокое значение добротности обуславливает усиление взаимодействия света с веществом за счет нелинейных эффектов. На рисунке 2а показаны измеренные зависимости интенсивности второй гармоники от диаметра частицы и длины падающей возбуждающей волны структурированной накачки. На вставке показан профиль в дальней зоне испускаемого излучения возбужденной квази-ССК моды.

Комбинационное рассеяние – это эффективный метод для изучения оптических мод. Значительное увеличение сигнала комбинационного рассеяния света соответствует эффективному взаимодействию энергии с модами наночастицы. Комбинационное рассеяние света, усиленное электрическим и магнитным резонансами Ми субволновых частиц [12], может быть использовано в качестве датчика [13] и для нанотермометрии [14]. Однако усиленное спонтанное комбинационное рассеяние света остается относительно слабым эффектом по сравнению с усиленной фотолюминесценцией, наблюдаемой в резонансных наноструктурах [15]. Зограф и соавторы [11] экспериментально пронаблюдали *вынужденное ком-*

бинационное рассеяние на изолированных субволновых *c*-Si наночастицах, усиленное мультипольными резонансами Ми. В своей работе они исследовали рассеяние на *c*-Si нанопилярах высотой 600 нм и диаметрами от 200 до 1000 нм, изготовленных методом электронно-лучевой литографии на подложке из Al_2O_3 (см. рис. 2b).

Сначала авторы выбрали субволновую наночастицу с наиболее сильным сигналом комбинационного рассеяния света. Для достижения этой цели были проведены измерения конфокального комбинационного рассеяния света от отдельных наночастиц *c*-Si на длине волны накачки 633 нм. Было обнаружено, что при низкой интенсивности максимальный сигнал комбинационного рассеяния света соответствует диаметру наночастиц 475 нм, поддерживающей магнитную дипольную и магнитную квадрупольную моды на длинах волн 654 и 633 нм, соответственно. Типичные экспериментальные зависимости сигнала комбинационного рассеяния света от интенсивности накачки показаны на рис. 2b. При малых интенсивностях зависимость линейная, и преобладает спонтанное комбинационное рассеяние света. Однако при более высоких интенсивностях (более $0.3 \text{ МВт}/\text{см}^2$) для нанодиска диаметром 475 нм наблюдался нелинейный рост сигнала комбинационного рассеяния света, который не обнаруживается для других нанодисков диаметром от 250 до 800 нм. Эта резкая разница характеризует процесс вынужденного комбинационного рассеяния света.

В режиме вынужденного комбинационного рассеяния более сильная накачка передает часть своей энергии более слабому стоксово-сдвинутому рамановскому сигналу за счет взаимодействия с нелинейной средой. В результате накачка может усилить слабый стоксов пучок, связанный с рамановским усилением. Когда фотоны накачки захватываются модой резонатора, комбинационное рассеяние усиливается и генерирует сигнал, который растет экспоненциально с входной интенсивностью.

Диэлектрические нанолазеры. Создание наносточника когерентного излучения – важная часть в разработке будущих оптических компьютерных систем. До сих пор создание полупроводниковых лазеров ограничивалось несколькими микронами. Дальнейшее уменьшение размеров затруднено из-за радиационных потерь. Использование плазмонных материалов может уменьшить радиационные потери и размер лазера, но при этом увеличиваются безызлучательные потери [16]. Недавние исследования продемонстрировали перспективность использования резонансных диэлектрических наноантенн

в нанофотонике. Низкие безызлучательные потери диэлектрических частиц позволяют рассматривать их в качестве источников лазерного излучения. Диэлектрические наноантенны уже были использованы для усиления сигнала комбинационного рассеяния [12] и фотолюминесценции материала наноантенн [17].

Галогенидные перовскиты являются перспективными материалами для лазерной генерации. Эти материалы имеют достаточно высокий показатель преломления, что позволяет создавать из них компактные конструкции, поддерживающие резонансы Ми [15, 17]. Кроме того, свинцово-галогенидные перовскиты имеют низкую концентрацию дефектов и высокий квантовый выход фотолюминесценции [18]. Более того, простые химические методы изготовления позволяют создавать оптические резонансные микроструктуры, генерирующие лазерное излучение в оптическом диапазоне частот [19, 20]. Однако создание субволнового резонатора является сложной задачей из-за того, что частицы маленького размера имеют большее отношение поверхности к объему, что увеличивает эффект поверхностной рекомбинации и влияние шероховатостей, которые в свою очередь приводят к более высоким потерям. В недавних исследованиях удалось преодолеть это ограничение и создать нанолазер размером 310 нм на основе свинцово-галогенидного перовскита, который работает при комнатной температуре и имеет соотношение размера к длине волны 0.58 [6]. Наночастица CsPbVg_3 была синтезирована химическим путем на подложке из Al_2O_3 (рис. 3a). Разложение по мультиполям частицы, генерирующей лазерное излучение, демонстрирует доминирующий вклад магнитной дипольной моды Ми третьего порядка [6].

Создание резонаторов меньшего размера при сохранении той же длины волны излучения обязательно подразумевает использование мод более низкого порядка, которые обладают более высокими радиационными потерями, что приводит к падению добротности. Мыльников и соавторы [21] предложили использовали цилиндрический наноразмерный резонатор, поддерживающий квази-ССК режим (см. рис. 3b). Использование режима суперрезонансой моды снижает радиационные потери, позволяя компенсировать усиление и потери в наночастицах меньшего размера. В результате авторы продемонстрировали нанолазер на основе GaAs диаметром 500 нм и высотой 330 нм на кварцевой подложке с длиной волны генерации 825 нм и с отношением размера к длине волны 0.6, работающий при криогенных температурах [21].

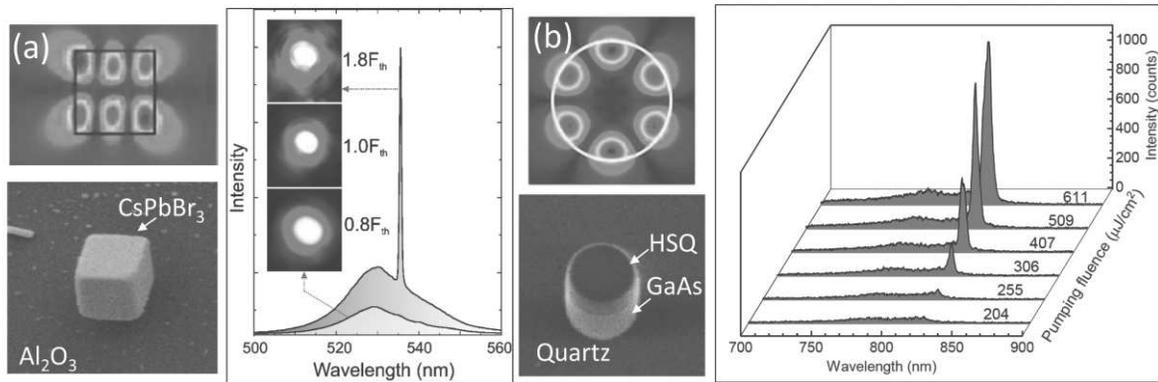


Рис. 3. (Цветной онлайн) Диэлектрические нанолазеры поддерживающие резонансные моды Ми низкого порядка на основе (а) – кубической наночастицы CsPbBr₃ и (б) – наноцилиндра GaAs. Изображения взяты из [6, 21]

Волноводы передающие медленный свет.

Недавний прогресс в технологии изготовления нанобъектов открывает большие возможности для проектирования субволновых структур на основе метаматериалов со специально разработанными оптическими свойствами, которые, как ожидается, улучшат характеристики фотонных устройств следующего поколения. Субволновые оптические волноводы привлекли большое внимание, поскольку они предоставляют уникальные возможности для миниатюризации технологий оптической связи. В последнее время обсуждаются разнообразные реализации субволновых структур в интегральной оптике для проектирования интегрированных фотонных платформ [22]. Основными целями этих исследований являются дизайн модовой дисперсии и анизотропии волновода и, в частности, достижение режима медленного распространения света. Следующим шагом было бы использование резонансов в таких волноводах медленного света на основе как электрических, так и магнитных мультипольных мод Ми [23].

В общем, распространение света через периодический пластинчатый волновод определяется дисперсией, показанной на рис. 4а (слева), и характеризуется тремя режимами: излучение, брэгговское рассеяние и субволновое распространение волн [22]. В режиме излучения периодический волновод представляет собой дифракционную решетку, излучающую из волновода в свободное пространство вверх и вниз, как показано на рис. 4а (справа). Для более коротких периодов волновод поддерживает моды Флоке–Блоха, характеризующиеся электрическим полем, модулированным с той же периодичностью, что и волновод. Однако, когда периодичность волновода становится существенно мень-

ше длины волны, волновод можно эффективно аппроксимировать как одноосный кристалл, что позволяет рассчитать его эффективный показатель преломления, как обсуждалось в работе [22]. В результате, волновод оптически эквивалентен однородному волноводу с эффективным показателем, определяемым коэффициентом заполнения (красная линия показывает эффективную дисперсию). Возможность управлять как дисперсией, так и анизотропией волноводов открывает много возможностей для проектирования волновых векторов распространяющихся мод [22].

Однако ситуация кардинально меняется при учете свойств отдельных резонаторов. Теоретические исследования показали [24], что электромагнитную энергию можно эффективно направлять вдоль цепочки наночастиц, когда поле локализовано на размере менее половины длины направляемой волны, что обеспечивает альтернативу плазмонным волноводам. Эта концепция была проверена в микроволновом диапазоне [25] с использованием аналога оптических наночастиц, реализованного для микроволн [26]. Полученные результаты предполагают, что цепочка наночастиц с высоким показателем преломления может направлять свет на расстояния, значительно превышающие расстояния, достижимые с помощью металлических или металл-диэлектрических плазмонных волноводов.

Диэлектрические наночастицы с высоким показателем преломления поддерживающие резонансы Ми, открывают новые возможности для управления светом на наномасштабах, из них также можно создать волновод медленного света в цепочке связанных резонансных наночастиц кремния на телекоммуникационных длинах волн. В недавних исследованиях бы-

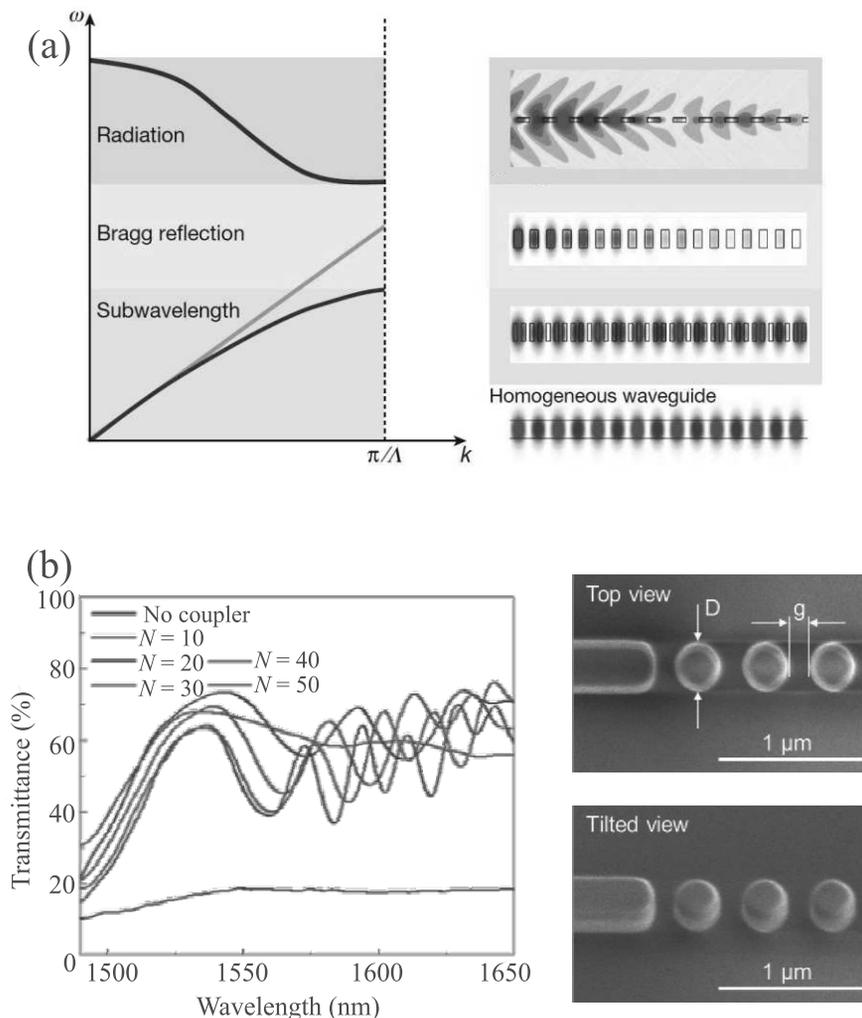


Рис. 4. (Цветной онлайн) Субволновые волноводы. (а) – Схематическая дисперсия (слева) и соответствующие профили электрического поля (справа) периодического пластинчатого волновода для трех режимов: излучения, брэгговского рассеяния и субволнового распространения волн. (б) – Пропускание и СЭМ-изображения волноводных массивов из Ми-резонансных наночастиц кремния. Изображения взяты из [22, 23]

ли экспериментально продемонстрированы возможности и преимущества этих новых типов субволновых волноводов, а также обсуждены их приложения [27, 28].

На рисунке 4б (слева) показано пропускание оптического устройства, основанного на цепочке наночастиц, показанной на рис. 4б (справа), с диаметрами $D = 340$ нм и расстоянием между частицами $g = 150$ нм, как гибридный оптический каплер [23]. Черная кривая – пропускание устройства без каплера для наночастиц, а цветные кривые – для устройств с каплером из различного числа N наночастиц. Можно заметить, что общий коэффициент пропускания через устройство увеличивается с 20 до $\sim 70\%$ из-за наночастиц. Кроме того, такие

Ми-резонансные массивы могут демонстрировать даже более низкие потери по сравнению с волноводами шириной 400 нм, а групповые скорости направленных мод в таких волноводах снижаются до 0.03 скорости света.

Высокочастотные диэлектрические метаповерхности. Методы поверхностно-усиленной спектроскопии обычно используются для получения информации о химическом составе, которая тесно связана со структурой и конформацией молекул. Традиционно поверхностно-усиленная спектроскопия основана на использовании металлических наночастиц, поддерживающих плазмонные резонансы, что обуславливает наличие значительных ограничений. Диэлектрические метаповерхности

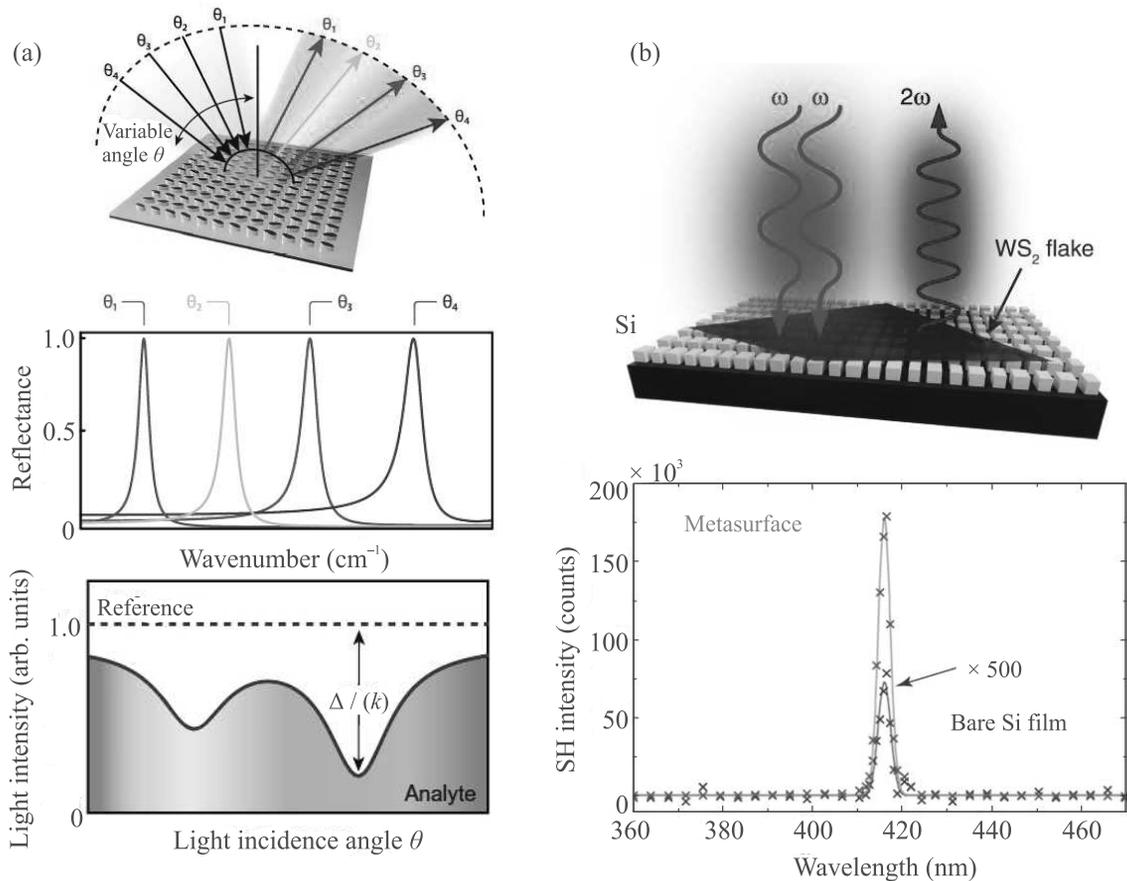


Рис. 5. (Цветной онлайн) Применение высокодобротных диэлектрических метаповерхностей. (а) – Концепция мультиплексирования по углам на основе диэлектрической метаповерхности. (б) – Генерация второй гармоники из монослоя WS_2 , помещенного поверх Si метаповерхности, и спектры интенсивности генерируемого сигнала второй гармоники. Изображения взяты из [29, 31]

являются альтернативным подходом к управлению как электрическими, так и магнитными полями с низкими материальными потерями, кроме того, они могут обеспечить совместимость с технологиями для промышленного производства.

Для спектроскопии среднего ИК-диапазона недавно были предложены высокодобротные метаповерхности, которые позволяют регистрировать степень абсорбции молекул через отраженный сигнал от разных пикселей и позволяют считывать информацию с помощью молекулярного штрих-кодирования на основе простых изображений [29]. Резонансы с высокой добротностью создаются за счет использования геометрии резонаторов с нарушенной симметрией, поддерживающих другой тип связанных состояний в континууме [30]. Создавая пиксельную структуру метаповерхности, можно связать различные резонансы с конкретным пикселем, отображая как спектральную, так и пространственную информацию. Степень абсорбции

молекул коррелирует с интенсивностью отраженного сигнала от разных пикселей и позволяет считывать информацию с помощью обработки регистрируемого изображения. Такая молекулярная визуализация может быть выполнена с использованием широкополосных источников света и детекторов, что позволяет работать без спектрометра на миниатюрной платформе. Многокомпонентные образцы, содержащие биомолекулы, загрязнители окружающей среды и полимеры, могут быть проанализированы путем сравнения штрих-кода неизвестной смеси с библиотекой эталонных штрих-кодов.

Угловое мультиплексирование – это многообещающая концепция, позволяющая кодировать различные значения оптических параметров. На рисунке 5а показана метаповерхность с мультиплексированием по углам [29], предназначенная для резонансного отражения в узком спектральном диапазоне вокруг частоты для каждого угла падения при освещении широкополосным источником. Оптический от-

клик обеспечивается высокодобротной диэлектрической метаповерхностью, состоящей из анизотропных массивов германиевых резонаторов на подложке из фторида кальция (CaF_2), которые коллективно взаимодействуют, создавая высокодобротные резонансы при отражении.

Еще одно перспективное направление использования высокодобротных диэлектрических метаповерхностей – это их объединение с атомарно тонкими монослоями дихалькогенидов переходных металлов (TMDC). Собственная нелинейность монослоев TMDC невелика, что ограничивает их применение в нелинейной оптике. Однако эффективная нелинейная восприимчивость TMDC может быть существенно улучшена путем интеграции их с диэлектрическими метаповерхностями, поддерживающими связанные состояния в континууме. Недавно Бернхардт и соавторы [31] продемонстрировали, что монослой WS_2 в сочетании с кремниевой метаповерхностью, поддерживающую ССК-моды, демонстрирует генерацию второй гармоники, усиленную более чем на 3 порядка по сравнению с монослоем WS_2 , помещенным поверх плоской кремниевой пленки той же толщины. Эти результаты открывают новые возможности использования диэлектрических метаповерхностей с высоким показателем преломления в качестве гибридных структур для усиления нелинейностей TMDC в нелинейной микроскопии и оптоэлектронике.

На рисунке 5b схематично показана гибридная фотонная структура (вверху) для усиленных нелинейных эффектов, состоящая из монослоя WS_2 , помещенного поверх кремниевой метаповерхности, созданной массивом пар квадратных наноструктур. На изображении ниже показаны измеренные спектры интенсивности второй гармоники от монослоев WS_2 , помещенных поверх оптимизированной метаповерхности (красный) и поверх эталонной объемной Si-пленки (серая, увеличенная в 500 раз) с длиной волны накачки 832 нм.

Заключение. Субволновые диэлектрические структуры и метаповерхности с низкими потерями, поддерживающие резонансы с высокой добротностью, идеально подходят для применения в нанофотонике для приложений, уже частично обсужденных в “Письмах в ЖЭТФ” [32–34], а также генерации высших гармоник, биосенсоров и квантовых эффектов. Ми-резонансные наноантенны и ССК-резонансные метаповерхности могут усиливать нелинейный отклик гибридных материалов при помещении таких материалов в ближнюю зону резонансов Ми, что приводит к улучшению

функциональных возможностей новых двумерных материалов и гибридных структур. Не менее важно, что активные наноантенны, поддерживающие резонансы Ми, могут использоваться в качестве компактных источников света с размерами в несколько раз меньшими, чем длина волны излучения, что делает возможным в перспективе плотную фотонную интеграцию для эффективных встроенных метаустройств.

Новые технологии, основанные на проектировании мультипольных Ми и ССК резонансов, могут существенно улучшить взаимодействие света и вещества, создавая резонансные ширины линий для применения в оптических устройствах. Сочетание преимуществ плоской оптики с диэлектрическими метаповерхностями может позволить реализовать новую стратегию управления фронтами оптических волн с помощью электромагнитного поля. В качестве одного из прорывных приложений хотелось бы упомянуть новый тип оптических биосенсоров и сенсоров хиральности молекул, использующих резонансы с высокой добротностью в пропускающих и отражающих диэлектрических структурах и, таким образом, расширяющих каналы излучения доступные для детектирования, увеличивая как чувствительность устройства, так и возможности мультиплексирования.

Современная интегральная фотоника требует разработки устройств, синтеза материалов, технологий создания наноструктур и техник их характеристики, и сочетание этих усилий будет лежать в основе новых открытий и приложений, начиная от плоских линз и заканчивая квантовыми вычислениями и хранением информации.

Авторы выражают признательность своим коллегам и соавторам за ценное сотрудничество и обсуждения, особенно К. Кошелеву, С. Макарову и М. Рыбину.

Работа поддержана Российским научным фондом (проект # 20-73-10183), Австралийским Исследовательским Советом (грант DP200101168) и Стратегическим фондом Австралийского национального университета.

1. S. Bozhevolnyi, V. Volkov, E. Devaux, J. Laluet, and T. Ebbesen, *Nature* **440**, 508 (2006).
2. K. Koshelev and Y. Kivshar, *ACS Photonics* (2020), in print; <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.0c01315>.
3. R. Won, *Nature Photon.* **13**, 585 (2019).
4. M. V. Rybin, K. L. Koshelev, Z. F. Sadrieva, K. B. Samusev, A. A. Bogdanov, M. F. Limonov, and Y. S. Kivshar, *Phys. Rev. Lett.* **119**, 243901 (2017).

5. M. Rybin and Y. Kivshar, *Nature* **541**, 164 (2017).
6. E. Tiguntseva, K. Koshelev, A. Furasova, P. Tonkaev, V. Mikhailovskii, E. V. Ushakova, D. G. Baranov, T. Shegai, A. A. Zakhidov, Y. Kivshar, and S. V. Makarov, *ACS Nano* **14**, 8149 (2020).
7. K. Koshelev, S. Kruk, E. Melik-Gaykazyan, J. H. Choi, A. Bogdanov, H. G. Park, and Y. Kivshar, *Science* **367**, 288 (2020).
8. L. Ding, D. Morits, R. Bakker, S. Li, D. Eschimese, S. Zhu, Y. F. Yu, R. Paniagua-Dominguez, and A. I. Kuznetsov, *ACS Photonics* **7**, 1001 (2020).
9. P. Cheben, P. J. Bock, J. H. Schmid, J. Lapointe, S. Janz, D. X. Xu, A. Densmore, A. Delage, B. Lamontagne, and T. J. Hall, *Opt. Lett.* **35**, 2526 (2010).
10. A. Ndao, L. Hsu, W. Cai, J. Ha, J. Park, R. Contractor, Y. Lo, and B. Kante, *Nanophotonics* **9**, 1081 (2020).
11. G. P. Zograf, D. Ryabov, V. Rutckaia, P. Voroshilov, P. Tonkaev, D. V. Permyakov, Y. Kivshar, and S. V. Makarov, *Nano Lett.* **20**, 5786 (2020).
12. P. A. Dmitriev, D. G. Baranov, V. A. Milichko, S. V. Makarov, I. S. Mukhin, A. K. Samusev, A. E. Krasnok, P. A. Belov, and Y. S. Kivshar, *Nanoscale* **8**, 9721 (2016).
13. I. Alessandri and J. R. Lombardi, *Chem. Rev.* **116**, 14921 (2016).
14. G. P. Zograf, M. I. Petrov, D. A. Zuev, P. A. Dmitriev, V. A. Milichko, S. V. Makarov, and P. A. Belov, *Nano Lett.* **17**, 2945 (2017).
15. E. Y. Tiguntseva, G. P. Zograf, F. E. Komissarenko, D. A. Zuev, A. A. Zakhidov, S. V. Makarov, and Y. S. Kivshar, *Nano Lett.* **18**, 1185 (2018).
16. M. P. Nezhad, A. Simic, O. Bondarenko, B. Slutsky, A. Mizrahi, L. Feng, V. Lomakin, and Y. Fainman, *Nature Photon.* **4**, 395 (2010).
17. S. Makarov, A. Furasova, E. Tiguntseva, A. Hemmetter, A. Berestennikov, A. Pushkarev, A. Zakhidov, and Y. Kivshar, *Adv. Opt. Mater.* **7**, 1800784 (2019).
18. J. M. Richter, M. Abdi-Jalebi, A. Sadhanala, M. Tabachnyk, J. P. H. Rivett, L. M. Pazos-Outón, K. C. Gödel, M. Price, F. Deschler, and R. H. Friend, *Nat. Commun.* **7**, 13941 (2016).
19. A. P. Pushkarev, V. I. Korolev, D. I. Markina, F. E. Komissarenko, A. Naujokaitis, A. Drabavičius, V. Pakštas, M. Franckevičius, S. A. Khubezhov, D. A. Sannikov, A. V. Zasedatelev, P. G. Lagoudakis, A. A. Zakhidov, and S. V. Makarov, *ACS Appl. Mater. Interfaces* **11**, 1040 (2019).
20. B. Tang, H. Dong, L. Sun, W. Zheng, Q. Wang, F. Sun, X. Jiang, A. Pan, and L. Zhang, *ACS Nano* **11**(11), 10681 (2017).
21. V. Mylnikov, S. T. Ha, Z. Pan, V. Valuckas, R. Paniagua-Dominguez, H. V. Demir, and A. I. Kuznetsov, *ACS Nano* **14**, 7338 (2020).
22. P. Cheben, R. Halir, J. H. Schmid, H. A. Atwater, and D. R. Smith, *Nature* **560**, 565 (2018).
23. D. Lu, Y. F. Yu, D. Morits, M. Yu, A. Y. L. Thomas, H. S. Chu, L. S. Thor, E. P. Ching, R. Paniagua-Dominguez, and A. I. Kuznetsov, *Nanoscale* (2020), in print; DOI: 10.1039/D0NR05248E.
24. J. Du, S. Liu, Z. Lin, J. Zi, and S. T. Chui, *Phys. Rev. A* **79**, 051801 (2009).
25. R. S. Savelev, A. P. Slobozhanyuk, A. E. Miroshnichenko, Y. S. Kivshar, and P. Belov, *Phys. Rev. B* **89**, 035435 (2014).
26. D. S. Filonov, A. E. Krasnok, A. P. Slobozhanyuk, P. V. Kapitanova, E. A. Nenasheva, Y. S. Kivshar, and P. A. Belov, *Appl. Phys. Lett.* **100**, 201113 (2012).
27. R. M. Bakker, Y. F. Yu, R. Paniagua-Dominguez, B. Luk'yanchuk, and A. I. Kuznetsov, *Nano Lett.* **17**, 3458 (2017).
28. L. Ding, D. Morits, R. Bakker, S. Li, D. Eschimese, S. Zhu, Y. F. Yu, R. Paniagua-Dominguez, and A. I. Kuznetsov, *ACS Photonics* **7**, 1001 (2020).
29. A. Leitis, A. Tittl, M. Liu, B. H. Lee, M. B. Gu, Y. Kivshar, and H. Altug, *Science Advances* **5**, eaaw2871 (2019).
30. K. Koshelev, S. Lepeshov, M. Liu, A. Bogdanov, and Y. Kivshar, *Phys. Rev. Lett.* **121**, 193903 (2018).
31. N. Bernhardt, K. Koshelev, S. J. U. White, K. W. C. Meng, J. E. Fröch, S. Kim, T. T. Tran, D. Y. Choi, Y. Kivshar, and A. S. Solntsev, *Nano Lett.* **20**, 5309 (2020).
32. Г. П. Зограф, Й. Ф. Ю, К. В. Барышникова, А. И. Кузнецов, С. В. Макаров, *Письма в ЖЭТФ* **107**, 732 (2018).
33. E. V. Melik-Gaykazyan, K. L. Koshelev, J.-H. Choi, S. S. Kruk, H.-G. Park, A. A. Fedyanin, and Y. S. Kivshar, *Письма в ЖЭТФ* **109**, 129 (2019).
34. А. М. Черняк, М. Г. Барсукова, А. С. Шорохов, А. И. Мусорин, А. А. Федянин, *Письма в ЖЭТФ* **111**, 40 (2020).

О возбуждении токов обратного направления в токовых слоях

А. Г. Франк¹⁾, С. Н. Сатуниин

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

Поступила в редакцию 30 сентября 2020 г.

После переработки 15 октября 2020 г.

Принята к публикации 16 октября 2020 г.

На основе представлений о возбуждении индукционных электрических полей при движении потоков плазмы в магнитном поле впервые дана последовательная интерпретация совокупности явлений на поздних стадиях эволюции токовых слоев. Показано, что индукционные поля неоднородны в пределах ширины слоя и максимальны на его краях, где возникают токи обратного направления. Время появления обратных токов зависит от времени ускорения плазмы и растет для плазмы с тяжелыми ионами. Уменьшение плотности тока и утолщение токового слоя вдали от центра вызвано возбуждением обратных токов, которые проявляются здесь косвенным образом. В областях с обратными токами впервые зарегистрированы токи Холла противоположных направлений по сравнению с ранними этапами эволюции слоя.

DOI: 10.31857/S1234567820220061

1. Процессы магнитного пересоединения лежат в основе многих нестационарных явлений в космической и лабораторной плазме, таких как вспышки на Солнце и звездах, суббури в магнитосферах Земли и планет и др. [1–5]. В результате процессов пересоединения происходит эффективное преобразование энергии магнитного поля в тепловую и кинетическую энергию плазмы, в потоки ускоренных частиц и излучений. Ключевую роль в этих процессах играют токовые слои, т.е. пространственно выделенные области замагниченной плазмы, в которых концентрируется электрический ток и которые служат границей раздела магнитных полей противоположных или различающихся направлений.

Концепция токовых слоев возникла в середине XX в. в связи с поисками механизмов, ответственных за такие грандиозные явления, как вспышки на Солнце. Вслед за развитием теоретических исследований в ряде лабораторий мира были начаты целенаправленные эксперименты, которые позволили детально изучать эволюцию и структуру токовых слоев в различных условиях (см. [6, 7] и цитированную там литературу). Вместе с тем, в течение нескольких десятилетий протяженный токовый слой хвостовой области магнитосферы Земли исследуется с помощью различных спутниковых миссий, что позволило получить колоссальный объем данных [5, 8].

Несмотря на огромные различия в масштабах, значениях плазменных параметров, величинах маг-

нитных полей, токов и др., обнаруживается поразительное качественное сходство между магнитосферными и лабораторными токовыми слоями [9–11], что указывает на единство фундаментальных процессов в лабораторной и космической плазме. Достаточно близкие значения безразмерных параметров, характеризующих магнитосферные и лабораторные токовые слои, позволяют обосновать возможность количественного лабораторного моделирования процессов, происходящих в хвостовой области магнитосферы Земли [10]. Таким образом, изучение структуры и динамики токовых слоев представляет значительный интерес как с фундаментальной, так и с прикладной точек зрения.

Один из интригующих моментов состоит в возможности появления в токовых слоях электрических токов обратного направления. Такая возможность была предсказана С. И. Сыроватским на основе теоретического анализа структуры “нейтральных” токовых слоев [12]. Затем слои с обратными токами рассматривались теоретически в ряде работ (см. [13] и цитированную там литературу). Экспериментально токи обратного направления были обнаружены у боковых краев токовых слоев на поздней стадии их эволюции [14, 15], причем наряду с появлением обратных токов наблюдалось уменьшение плотности тока и увеличение толщины периферийных областей токовых слоев. Однако до последнего времени вопросы о связи между этими явлениями и с другими процессами в токовых слоях, а также о природе и особенностях появления обратных токов оставались открытыми.

¹⁾e-mail: annfrank@fpl.gpi.ru

В настоящей работе рассмотрены динамические процессы в токовых слоях, которые вызваны движением направленных потоков плазмы в магнитном поле и возбуждением индукционных электрических полей. В результате удалось объяснить причины возникновения обратных токов, особенности их эволюции, а также последствия их появления. Обсуждение этих вопросов базируется на анализе и интерпретации экспериментальных результатов, полученных при изучении токовых слоев с помощью установки ТС-3D (ИОФ РАН) [16, 17].

2. Токовые слои формируются в установке ТС-3D, рис. 1, в магнитном поле с особой линией **X** типа, которая расположена на оси $0z$:

$$\mathbf{V} = \{B_x^0; B_y^0; B_z^0\} = \{hy; hx; B_z^0\}. \quad (1)$$

Магнитное поле (1) однородно в z -направлении, h – градиент магнитного поля в плоскости (x, y) , B_z^0 – однородная продольная компонента поля. Ось цилиндрической кварцевой вакуумной камеры диаметром $2R_c = 18$ см и длиной 100 см совмещена с **X** линией магнитного поля (1), рис. 1. Камера заполняется аргоном или криптоном до давления ≈ 30 мТорр, и с помощью вспомогательного Θ -разряда в ней создается начальная плазма с концентрацией $N_e \approx (2-5) \times 10^{14}$ см $^{-3}$. Затем между двумя электродами, введенными в камеру с торцов на расстоянии $\Delta z = 60$ см друг от друга, прикладывается импульсное напряжение U_z , которое возбуждает в плазме электрический ток J_z параллельно **X** линии. Зависимость тока от времени близка к синусоидальной (амплитуда $J_z^0 \approx 30 \div 50$ кА, полупериод $T/2 = 6$ мкс). Ток J_z инициирует течения плазмы в плоскости (x, y) , которые приводят к концентрации тока в окрестности плоскости $(y = 0)$ (при определенных направлениях поля (1) и тока J_z), т.е. к формированию токового слоя, рис. 1.

Структура магнитного поля и токов плазмы исследовалась с помощью системы магнитных зондов, которые перемещались либо вдоль поверхности токового слоя (линия AA', $y = 0.8$ см), либо поперек слоя, на двух расстояниях от **X** линии (BB', $x = -0.8$ см, и CC', $x = -5$ см), рис. 1. В каждой точке зонды регистрировали изменения во времени трех взаимно перпендикулярных компонент магнитного поля, что позволило получить распределения магнитных полей, плотности тока $j_z(y)$, линейной плотности тока $I_z(x) = \int j_z(x, y) \cdot dy$ вдоль поверхности токового слоя и сил Ампера [14, 15].

Тепловые и направленные скорости ионов определялись на основе доплеровских уширений профилей спектральных линий ионов аргона, Ar II 480.6 нм

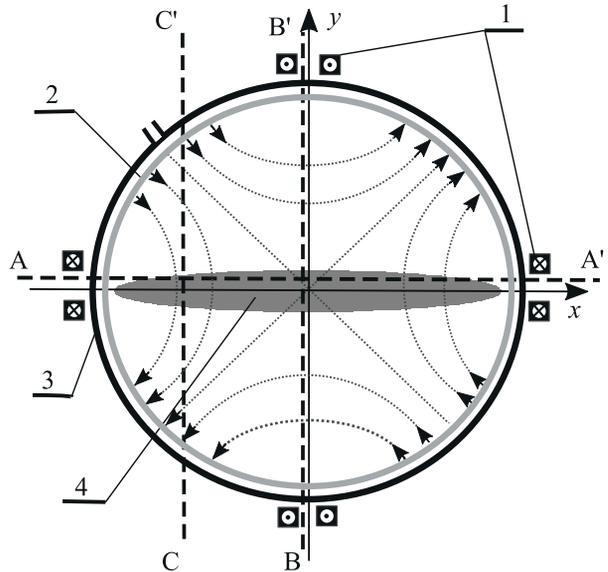


Рис. 1. Поперечное сечение установки ТС-3D: 1 – проводники с токами для возбуждения 2D магнитного поля $\mathbf{V} = \{hy; hx; 0\}$, силовые линии которого показаны штриховыми линиями со стрелками; 2 – вакуумная камера; 3 – система витков Θ -разряда; 4 – токовый слой. AA', BB', CC' – линии перемещения магнитных зондов

и Ar III 379.5 нм [18–20]. Излучение плазмы регистрировалось одновременно по двум взаимно перпендикулярным направлениям: вдоль направления тока (ось z) и вдоль ширины (большого поперечного размера) токового слоя (ось x). При этом было показано, что наиболее интенсивные потоки плазмы возникают в x направлении, вдоль поверхности токового слоя, что обусловлено магнитной структурой слоя [14, 19].

3. Возбуждение тока J_z и формирование токового слоя изменяют структуру исходной магнитной конфигурации (1) [7, 14, 21]. Вблизи поверхности слоя тангенциальная компонента магнитного поля B_x существенно увеличивается, а направление B_x изменяется на противоположное в пределах сравнительно узкой области, где сосредоточен ток плазмы J_z , рис. 2а. Одновременно нормальная к поверхности слоя компонента B_y значительно уменьшается по сравнению с величиной B_y^0 вакуумного поля (1), рис. 2б. Как правило, B_y имеет то же направление, что и B_y^0 , и в пределах токового слоя абсолютная величина B_y растет практически линейно по мере удаления от середины слоя вдоль оси x , при этом производная $\partial B_y / \partial x$ в 2–3 раза меньше, чем градиент h . Вблизи боковых краев слоя B_y резко возрастает и приближается к величине B_y^0 , рис. 2б.

Появление токов обратного направления у боковых концов токового слоя было обнаружено при ис-

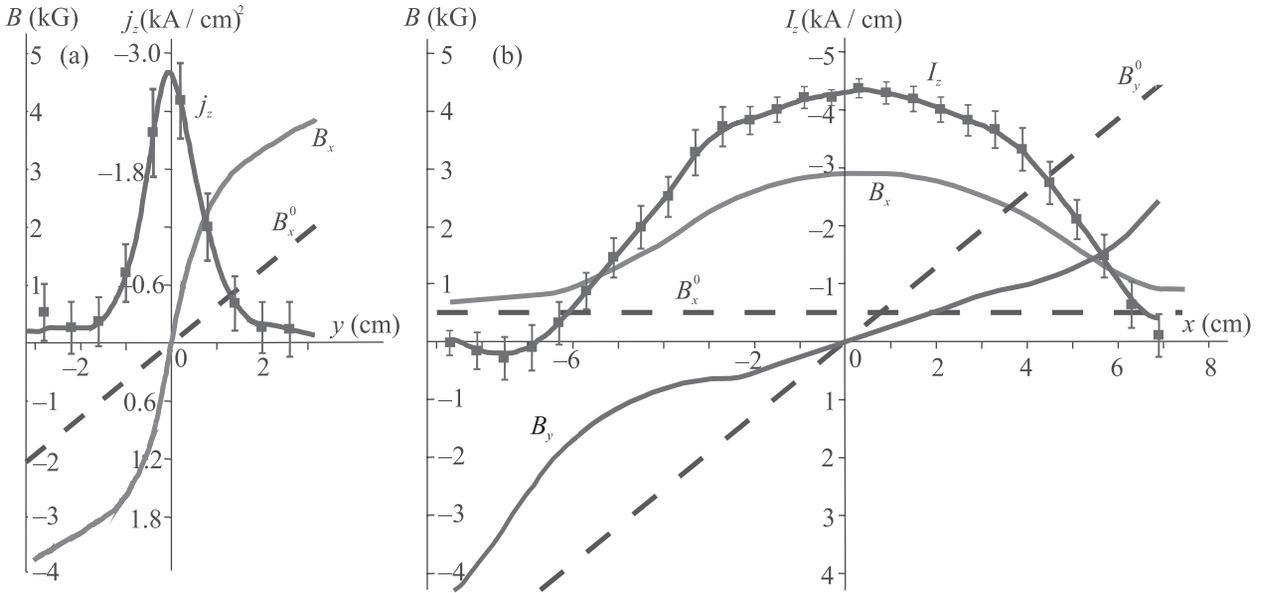


Рис. 2. (Цветной онлайн) Распределения магнитных полей и токов в токовом слое. (а) – Поперек слоя, при $x = -0.8$ см, линия BB' (рис. 1); (б) – вдоль слоя, при $y = 0.8$ см, линия AA' (рис. 1). B_x и B_y – тангенциальная и нормальная компоненты магнитного поля токового слоя; B_x^0 и B_y^0 – тангенциальная и нормальная компоненты вакуумного магнитного поля; $j_z(y)$ – плотность тока; $I_z(x)$ – ток в области $|y| \leq 0.8$ см. Условия эксперимента: Ar, $p = 28$ мТорр; $B_z = 0$; $h = 0.63$ кГс/см, $J_z^{\max} = 45$ кА; $t = 1.9$ мкс

следовании эволюции распределения вдоль ширины слоя линейного тока $I_z(x) = \int j_z(x, y) \cdot dy$, рис. 3. Здесь $I_z(x)$ – это ток в пределах области $|y| \leq \Delta y = 0.8$ см, подробнее см. [14]. К моменту времени $t = 1.6$ мкс токовый слой сформирован, ток $I_z(x)$ имеет одно и то же направление в пределах всего слоя, максимум распределения $I_z(x)$ – в середине слоя ($x = 0$), у боковых концов слоя ($|x| \cong 6.9$ см) ток I_z обращается в нуль. При $t = 2.3$ мкс на краю слоя (-6.6 см $\geq x \geq -7.8$ см) возникает ток I_z , направление которого противоположно направлению основного тока, протекающего в центральной (большей) части слоя. В последующие моменты ($t = 3.5; 4.5$ мкс) обратные токи у боковых концов слоя увеличиваются, и распределения $I_z(x)$ достаточно симметричны.

Для сравнения особенностей развития токов обратного направления в различных условиях вычислялись зависимости от времени интегральных величин прямых и обратных токов в пределах половины ширины токового слоя ($-R \leq x \leq 0$), рис. 4а, б [14]. Токи прямого направления интегрировались по центральной области слоя ($x^R(t) \leq x \leq 0$), а обратные токи – по периферийной области ($-R \leq x \leq x^R(t)$); здесь $x^R(t)$ – координата, где ток $I_z(x, t)$ изменяет знак. Установлено, что обратные токи могут возникать в широком диапазоне условий, в том числе при развитии слоя в плазме с ионами различной массы,

однако, момент появления обратных токов и их величины различались. Так, при формировании слоя в Ar плазме обратный ток возникал уже при $t \cong 2$ мкс (рис. 4а), тогда как при развитии слоя в Kr обратный ток появлялся лишь при $t \cong 4$ мкс (рис. 4б).

При сравнении эволюции распределений плотности тока $j_z(y)$ в двух поперечных сечениях слоя: в центральной области ($x = -0.8$ см) и вдали от центра ($x = -5$ см), было обнаружено их заметное различие. На рисунке 5 приведены для обоих сечений зависимости от времени максимальных плотностей тока $j_z^0(t)$ в средней плоскости слоя ($y = 0$) и поперечных размеров слоя $2\delta y_{0.5}(t)$ и $2\delta y_{0.1}(t)$ на уровнях плотности тока: $j_z = 0.5j_z^0$ и $j_z = 0.1j_z^0$. В процессе формирования токового слоя и вплоть до момента $t \cong 2.5$ мкс происходил быстрый рост j_z^0 и уменьшение размеров $2\delta y_{0.5}$ и $2\delta y_{0.1}$ в обоих сечениях, рис. 5а, б, что отражало сжатие тока в слой. При $t \cong 2.5$ мкс плотности тока достигали максимальных значений: $j_z^0 \cong 2.1$ кА/см² в центральной области и $j_z^0 \cong 1.8$ кА/см² при $x = -5$ см, а затем величины j_z^0 уменьшались в обоих сечениях, но с различной скоростью: вдали от центра плотность тока j_z^0 уменьшалась значительно быстрее, чем в середине слоя. Так, отношение максимальных плотностей тока в двух сечениях уменьшалось от $\cong 0.65$ при $t \cong 2.5$ мкс до $\cong 0.38$ при $t \cong 4.0$ мкс. Вдали от центра более быстрое

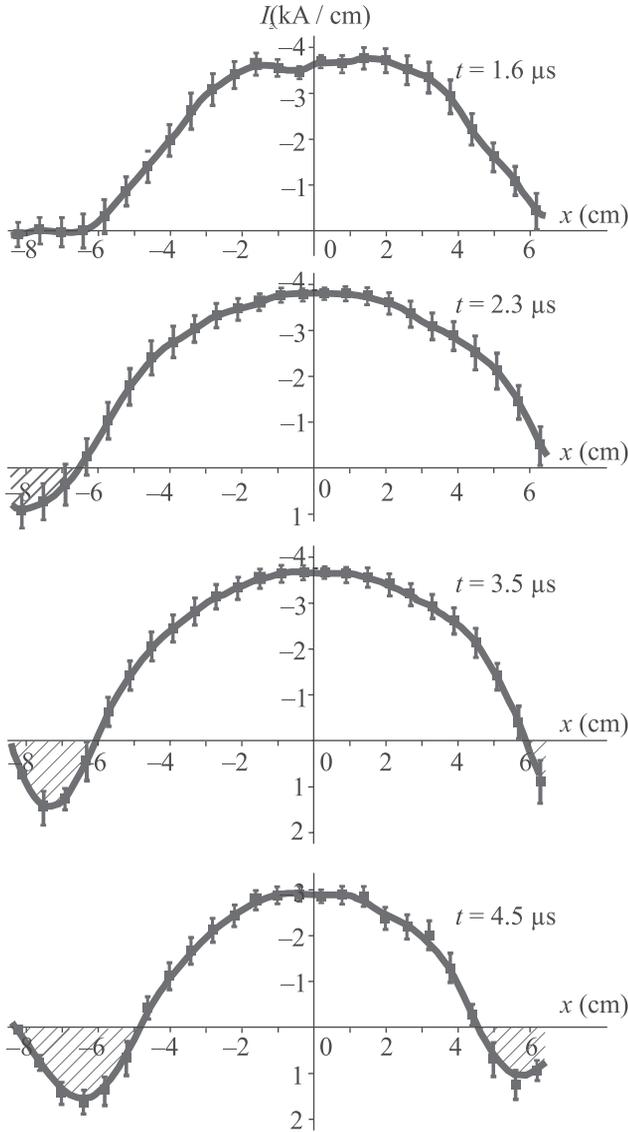


Рис. 3. (Цветной онлайн) Распределения тока $I_z(x)$ в пределах области $|y| \leq 0.8$ см в последовательные моменты времени. Условия эксперимента см. рис. 2

уменьшение j_z^0 сопровождалось увеличением поперечных размеров слоя, или его “утолщением”, рис. 5b, что контрастирует с постоянством обоих размеров слоя в центре вплоть до момента $t \cong 5.0$ мкс, рис. 5а. Подчеркнем, что увеличение меньшего поперечного размера (толщины) вдали от середины токового слоя практически совпадало по времени с появлением у боковых концов слоя токов обратного направления.

4. Стадия формирования токового слоя и начала метастабильной стадии во многих случаях сопровождаются возбуждением токов Холла, которые обусловлены движением электронов относительно инерционных и малоподвижных ионов [22]. На основании

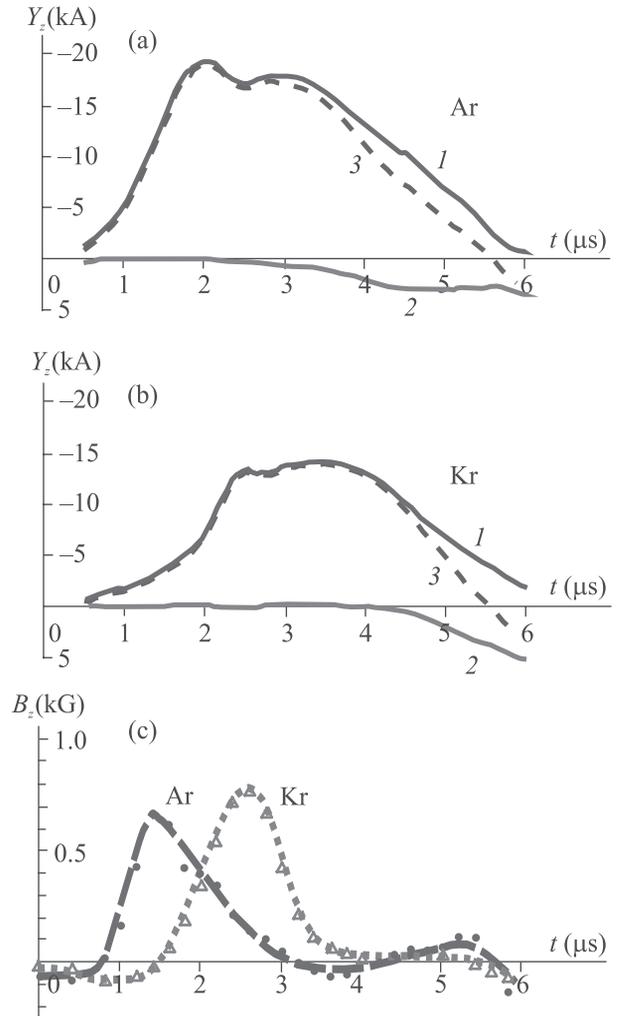


Рис. 4. (Цветной онлайн) (а) и (b) – Зависимости от времени интегральных значений токов в пределах области $(-R \leq x \leq 0)$ в токовых слоях, формируемых в плазме с ионами Ar и Kr: 1 – интегралы токов прямого направления $Y_z^{(+)}(t) = \int I_z(x, t) dx$ по области $(x^R \leq x \leq 0)$; 2 – интегралы токов обратного направления $Y_z^{(-)}(t)$ по области $(-R \leq x \leq x^R)$; 3 – интегралы суммарных токов $Y_z^{\Sigma}(t) = Y_z^{(+)} + Y_z^{(-)}$ по области $(-R \leq x \leq 0)$. (с) – Зависимость от времени продольной компоненты квадрупольного магнитного поля B_z , создаваемой токами Холла, при $(x = -5$ см; $y = +0.8$ см) в токовых слоях, формируемых в плазме с ионами Ar и Kr. Условия эксперимента: $h = 0.63$ кГс/см; $J_z^{\max} = 45$ кА; Ar, $p = 28$ мТорр; Kr, $p = 36$ мТорр

обобщенного закона Ома можно определить плотность токов Холла \mathbf{j}^H в плоскости (x, y) :

$$\mathbf{j}^H = -(\sigma / ceN_e)[j_z \times \mathbf{B}_{\perp}]. \tag{2}$$

Здесь j_z – плотность основного тока в слое, \mathbf{B}_{\perp} – поперечное по отношению к току j_z магнитное поле, N_e – концентрация электронов, σ – проводимость

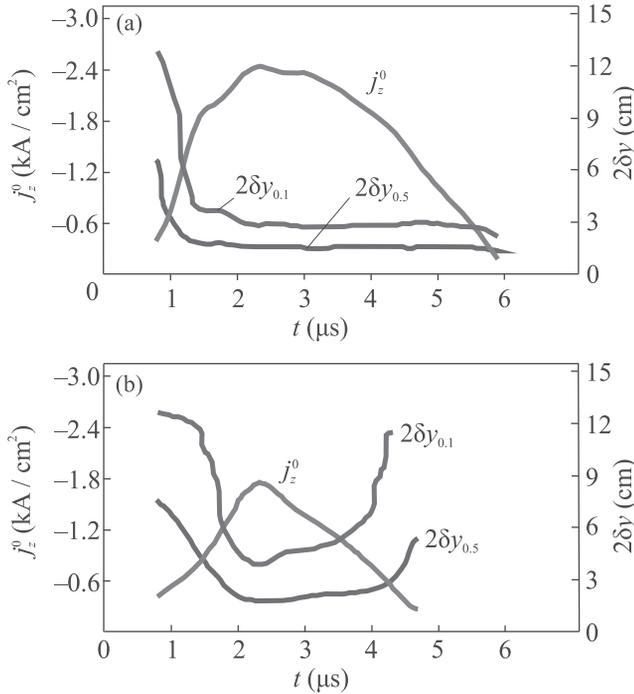


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимости от времени плотности тока $j_z^0(t)$ в средней плоскости токового слоя ($y = 0$) и поперечных размеров слоя на уровнях плотности тока $j_z = 0.5j_z^0$ и $j_z = 0.1j_z^0$ в двух поперечных сечениях слоя: (а) $-x = -0.8$ см; (б) $-x = -5$ см. Условия эксперимента см. рис. 2

плазмы. В пределах токового слоя токи Холла образуют четыре замкнутых токовых контура, создавая квадрупольное магнитное поле B_z [22]. Вблизи средней плоскости слоя ($y \cong 0$) токи Холла направлены вдоль оси x от обоих боковых краев к середине слоя.

В процессе эволюции слоя токи Холла довольно быстро затухают, что проявляется в уменьшении B_z компоненты квадрупольного поля, рис. 4с. Затухание токов Холла связано с началом движения ионов вслед за электронами вдоль поверхности токового слоя в x направлении, от середины слоя к боковым краям. Время затухания токов Холла возрастает для ионов большей массы [22], что видно из сравнения зависимостей $B_z(t)$ для слоев, сформировавшихся в плазме с ионами Ag или Kг, массы которых различаются вдвое, рис. 4с. Интервал времени, в течение которого в слое существуют токи Холла, качественно характеризует временную задержку, с которой происходит ускорение ионов.

Потоки плазмы, которые возникали в токовых слоях и двигались в x направлении, были обнаружены и изучались в ряде работ [18–20]. Скорости плазмы v_x со временем увеличивались, и во многих случаях средняя энергия направленного движения ионов W_x превышала тепловую энергию ионов. При

развитии токового слоя в Ag плазме скорости направленного движения ионов достигали величин $v_x \cong \cong (2-3) \cdot 10^6$ см/с к моментам времени $t \cong (2 \div 2.5)$ мкс [20].

5. Движение потоков плазмы со скоростями v_x в поперечном магнитном поле B_y должно приводить к возбуждению индукционных электрических полей $E'_z(x)$:

$$E'_z(x) = (1/c) \cdot \{v_x(x)B_y(x)\}. \quad (3)$$

Направление полей $E'_z(x)$ противоположно направлению исходного электрического поля E_z^0 , которое возбуждало ток J_z и приводило к формированию токового слоя. При этом локальная величина $E'_z(x)$ зависит как от скорости плазмы $v_x(x)$, так и от напряженности нормальной компоненты $B_y(x)$. В центральной области слоя ($|x| \cong 0$) скорости малы, $|v_x| \cong 0$, но по мере движения плазмы от середины слоя к боковым краям скорости v_x увеличиваются. Нормальная компонента $|B_y|$ также мала в центре и значительно возрастает у боковых краев слоя ($|x| \gg 0$), рис. 2б. Отсюда следует, что возникающие при движении потоков плазмы электрические поля $E'_z(x)$ должны быть существенно неоднородными в пределах слоя и должны резко увеличиваться у его боковых краев.

Под действием полей $E'_z(x)$ в токовом слое возбуждаются электрические токи j'_z противоположного направления по отношению к основному току в слое j_z . Суперпозиция основного и обратного токов приводит к уменьшению основного тока в пределах всего слоя, однако, в силу неоднородности $|v_x|$ и $|B_y|$ проявления этого эффекта различны в разных областях. В центральной области слоя электрические поля E'_z и, следовательно, обратные токи j'_z малы, основной ток максимален, и роль обратных токов незначительна. Напротив, вблизи боковых краев, где напряженность E'_z существенно увеличивается, обратные токи j'_z должны вносить определяющий вклад в суммарный ток, в особенности с учетом уменьшения основного тока на периферии слоя, рис. 3. Действительно, обратный ток появляется, прежде всего, на самом краю токового слоя, при $x \cong -(7 \div 8)$ см.

У боковых краев токового слоя, при $|x| \cong \cong (7 \div 8)$ см, где $|B_y| \cong (2.5 \div 3.7) \cdot 10^3$ Гс и скорости потоков Ag плазмы $|v_x| \cong 3 \cdot 10^6$ см/с, напряженность индукционного поля можно оценить как $E'_z \cong 90$ В/см. Начальное поле, которое при $t = 0$ составляло $E_z^0 \cong 150$ В/см и со временем уменьшалось, к моменту $t \cong 2.3 \div 3.0$ мкс не превышало $E_z^0 \cong 40$ В/см. Таким образом, $|E'_z| > |E_z^0|$ у боковых

концов слоя, что позволяет объяснить появление обратных токов именно в этих пространственных областях.

Время появления обратных токов у боковых концов слоя естественно связать с приходом в эти области ускоренных потоков плазмы, которые двигаются в x направлении от середины слоя к его краям. Интервал времени, в течение которого плазменные потоки достигают достаточно больших скоростей, можно оценить на основании времени затухания токов Холла, которое увеличивается для плазмы с ионами большей массы, рис. 4с. Соответственно, наблюдается и более позднее появление обратных токов в токовых слоях, сформированных в плазме с более тяжелыми ионами, ср. рис. 4а и б.

6. Более быстрое уменьшение тока j_z^0 при $x = -5$ см по сравнению с центральной областью токового слоя ($x = -0.8$ см), начиная с момента $t > 2.5$ мкс, рис. 5, также, по всей вероятности, вызывается появлением токов обратного направления. Однако при $x = -5$ см величины B_y и v_x значительно меньше, чем у боковых концов слоя, так, $|B_y| \cong 1.1 \cdot 10^3$ Гс, рис. 2б. В результате возникающие здесь обратные токи j'_z меньшей величины, чем у боковых краев слоя, непосредственно не наблюдаются, но приводят к эффекту более быстрого уменьшения плотности основного тока j_z^0 , чем в центре. В свою очередь, уменьшение тока j_z^0 и, следовательно, уменьшение тангенциальной компоненты магнитного поля B_x вызывали в поздние моменты времени уменьшение сил, которые ранее приводили к сжатию тока и плазмы в пределы слоя. Так, при $t \cong 4.0$ мкс силы сжатия были в $\cong 6$ раз меньше, чем при $t \cong 2.5$ мкс, что приводило к утолщению токового слоя при $x = -5$ см.

Таким образом, генерация в токовом слое токов обратного направления проявляется, как в явном так и в неявном виде. В первом случае непосредственно регистрируются обратные токи, тогда как во втором наблюдается более быстрое уменьшение плотности основного тока и утолщение токового слоя.

7. Как следует из соотношения (2), в тех областях токового слоя, где возникли обратные токи, можно ожидать изменения направлений, как токов Холла, так и движения ионов вдоль поверхности слоя (вдоль оси x). Косвенные указания на изменение направления токов Холла в периферийных областях слоя были получены при анализе изменений отклонения токового слоя от средней плоскости во внешнем продольном магнитном поле B_z^0 [23].

В настоящей работе впервые представлены результаты, свидетельствующие об изменении направ-

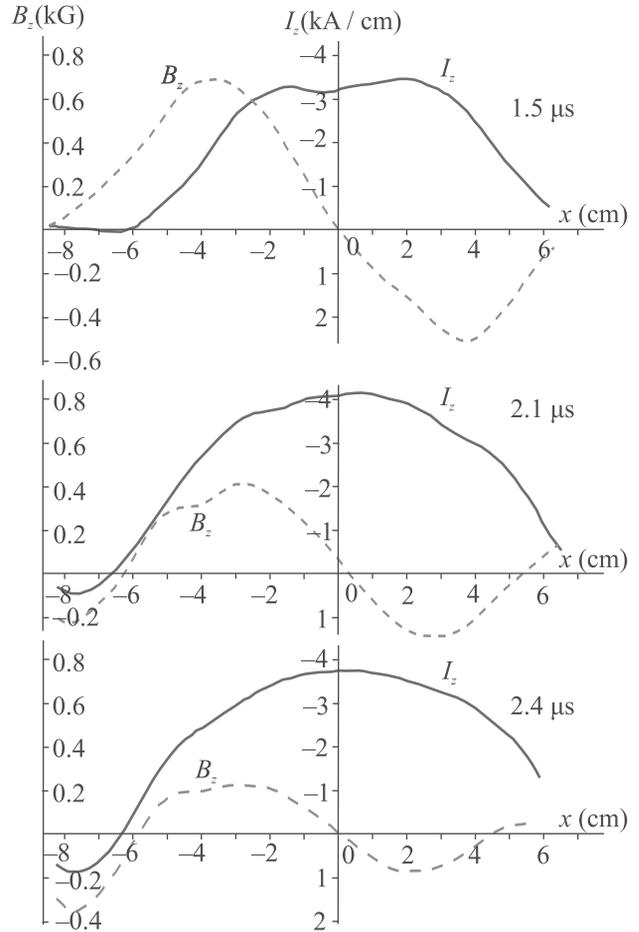


Рис. 6. (Цветной онлайн) Распределения тока $I_z(x)$ в пределах области $|y| \leq 0.8$ см и продольной компоненты квадрупольного магнитного поля B_z при $y = +0.8$ см в последовательные моменты времени. Условия эксперимента: Ar, $p = 28$ мТорр; $B_z = 0$; $h = 0.57$ кГс/см, $J_z^{\max} = 45$ кА

ления токов Холла в тех областях слоя и в те моменты времени, когда возникали обратные токи, рис. 6. В ранний момент времени, $t = 1.5$ мкс, распределения вдоль ширины слоя линейного тока $I_z(x)$ и продольной компоненты магнитного поля $B_z(x)$, создававшейся токами Холла, соответствуют “классическому” слою с одним направлением тока I_z и квадрупольным полем $B_z(x)$ [22]. Однако при $t = 2.1$ мкс, когда в области $x = -(7 \div 8)$ см появился ток I_z обратного направления, в этой же области изменился знак B_z компоненты, что указывает на изменение направления токов Холла. В последующие моменты, $t = 2.4$; 3.0 мкс, квадрупольное поле B_z уменьшалось в центральной области слоя из-за затухания токов Холла, тогда как на краю, при $x \leq -6$ см, отрицательная B_z компонента увеличивалась синхронно с ростом обратного тока I_z . Это означает, что в областях, где

появились обратные токи, движение электронов было направлено в противоположную сторону по сравнению с ранними моментами времени, т.е. от боковых краев к середине слоя.

В областях с обратными токами должно изменяться на противоположное и направление сил, которые ускоряют ионы, что может приводить к заметному замедлению движения плазменных потоков. Возможно, что с этим эффектом связан характер изменения со временем энергии потоков плазмы W_x , когда после стадии роста и достижения некоторого максимального значения энергия W_x довольно быстро уменьшалась, см. [18, 20]. Можно предполагать, что обратные токи, возникшие в токовом слое благодаря движению потоков плазмы, затем вызывают торможение, либо даже прекращение движения этих потоков.

8. Выводы. Появление токов обратного направления в токовых слоях и их основные особенности интерпретируются в рамках концепции о возбуждении индукционных электрических полей при движении плазменных потоков в магнитном поле. Установлено, что возникающие электрические поля существенно неоднородны в пределах ширины токового слоя, что обусловлено неоднородным характером скоростей движения плазмы и напряженности нормальной компоненты магнитного поля. У боковых краев слоя индукционные поля достигают максимальных значений, где они могут превысить по абсолютной величине начальное электрическое поле, которое инициировало формирование токового слоя. Этот вывод согласуется с результатами эксперимента, согласно которым обратные токи действительно возникают у боковых краев слоя.

Показано, что момент появления обратных токов определяется интервалом времени, которое необходимо для ускорения плазмы. Время ускорения возрастает с увеличением массы ионов, что соответствует более позднему появлению обратных токов при формировании токового слоя в плазме с более тяжелыми ионами.

Показано, что сравнительно быстрое уменьшение плотности тока и увеличение поперечных размеров, или “утолщение”, токового слоя вдали от центральной области вызывается появлением токов обратного направления не только у боковых краев, но в пределах всего токового слоя. Обратные токи меньшей величины не регистрировались непосредственно, но проявлялись косвенным образом.

В областях токового слоя с обратными токами впервые зарегистрированы токи Холла противоположных направлений по сравнению с токами Холла

на ранних этапах эволюции слоя. Показано, что направление сил, которые ускоряют ионы, также должно изменяться на противоположное, что может вызывать торможение потоков плазмы.

Работа выполнена в рамках Государственного задания “Фундаментальные проблемы динамики, удержания и нагрева плазмы в трехмерных магнитных конфигурациях” # 0024-2018-0045.

1. S. I. Syrovatskii, *Annu. Rev. Astron. Astrophys.* **19**, 163 (1981).
2. D. Biscamp, *Magnetic Reconnection in Plasmas*, Cambridge Univ. Press, Cambridge (2000).
3. Э. Прист, Т. Форбс, *Магнитное пересоединение*, Физматлит, М. (2005).
4. Б. Б. Кадомцев, *УФН* **151**, 3 (1987).
5. Л. М. Зеленый, А. В. Артемьев, Х. В. Малова, А. А. Петрукович, Р. Накамура, *УФН* **180**, 973 (2010).
6. M. Yamada, R. Kurlsrud, and H. Ji, *Rev. Mod. Phys.* **82**, 603 (2010).
7. А. Г. Франк, *УФН* **180**, 982 (2010).
8. W. Baumjohann, A. Roux, O. Le Contel, R. Nakamura, J. Birn, M. Hoshino, A. T. Y. Lui, C. J. Owen, J.-A. Sauvaud, A. Vaivads, D. Fontaine, and A. Runov, *Ann. Geophys.* **25**, 1365 (2007).
9. A. V. Artemyev, A. A. Petrukovich, A. G. Frank, I. Y. Vasko, R. Nakamura, and L. M. Zelenyi, *J. Geophys. Res.* **118**, 2789 (2013).
10. А. Г. Франк, А. В. Артемьев, Л. М. Зеленый, *ЖЭТФ* **150**, 807 (2016).
11. Е. В. Юшков, А. Г. Франк, А. В. Артемьев, А. А. Петрукович, Р. Накамура, *Физика плазмы* **44**, 1126 (2018).
12. С. И. Сыроватский, *ЖЭТФ* **60**, 1727 (1971).
13. B. V. Somov, *Plasma Astrophysics*, Springer, N.Y. (2013), Pt. II.
14. А. Г. Франк, С. Н. Сатунин, *Физика плазмы* **37**, 889 (2011).
15. A. G. Frank, N. P. Kyrie, and S. N. Satunin, *Phys. Plasmas* **18**, 111209 (2011).
16. A. G. Frank, *Plasma Phys. Contr. Fusion* **41**, Suppl. 3A, A687 (1999).
17. С. Ю. Богданов, Н. П. Кирий, В. С. Марков, А. Г. Франк, *Письма в ЖЭТФ* **71**, 72 (2000).
18. Н. П. Кирий, В. С. Марков, А. Г. Франк, *Физика плазмы* **36**, 387 (2010).
19. А. Г. Франк, Н. П. Кирий, В. С. Марков, Е. В. Воронова, *Физика плазмы* **44**, 483 (2018).
20. Н. П. Кирий, А. Г. Франк, Д. Г. Васильков, *Физика плазмы* **45**, 313 (2019).
21. A. G. Frank, S. G. Bugrov, and V. S. Markov, *Phys. Lett. A* **373**, 1460 (2009).
22. A. G. Frank, S. G. Bugrov, and V. S. Markov, *Phys. Plasmas* **15**, 092102 (2008).
23. А. Г. Франк, С. Н. Сатунин, *Письма в ЖЭТФ* **100**, 83 (2014).

Новая фаза немоллекулярного полимерного азота, устойчивая при нулевом давлении

К. С. Гришаков¹⁾, Н. Н. Дегтяренко

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

Поступила в редакцию 8 октября 2020 г.

После переработки 8 октября 2020 г.

Принята к публикации 10 октября 2020 г.

В рамках первопринципных расчетов обнаружена новая кристаллическая фаза азота, обладающая симметрией кристаллической решетки P-62c и устойчивая в отсутствии внешнего давления. Представлены результаты исследования ее структурных, энергетических, механических, электронных и фононных свойств при различных давлениях. Проведено сопоставление полученных результатов с известными в литературе фазами азота, стабильными в области низких давлений.

DOI: 10.31857/S1234567820220073

Введение. Проблема поиска материалов с высокой плотностью запасаемой энергии (HEDM – *high energy density material*) в настоящее время является весьма актуальной как с прикладной, так и с фундаментальной точек зрения. Физические причины выбора азота в качестве перспективного элемента для создания материалов с высокой плотностью запасаемой энергии имеют несколько оснований. Как известно, в нормальных условиях азот существует в виде двухатомных молекул N_2 с тройной ковалентной связью, которая является одной из самых прочных ковалентных связей в природе, ее энергия составляет 4.9 эВ/атом [1]. В кластерах азота и полимерных структурах связи между атомами азота имеют меньшую кратность и, соответственно, обладают меньшей энергией связи. Так, энергия двойной связи $N=N$ равна 2.17 эВ/атом, а одинарная связь между атомами азота оказывается еще более слабой, ее энергия составляет 0.83 эВ/атом [1]. Таким образом, для азота сумма энергий трех одинарных связей существенно меньше энергии тройной связи. Это предоставляет возможность, создавая азотосодержащее вещество, в котором атомы азота связаны друг с другом одинарными связями, запасать энергию. Такое соотношение между энергиями связи не характерно для других элементов, например, у углерода энергия трех одинарных связей несколько больше энергии одной тройной связи (три одинарные связи характерны для графитовых слоев). Расчетная эффективность полимерного азота в качестве материала с высокой плотностью запасаемой энергии, по крайней мере, в несколько раз выше дру-

гих высокоэнергетических веществ [2], в частности, для гексанитрогексаазаизовюрцитана – CL-20 (или HNIW), в котором накопление энергии имеет место за счет сильно растянутых связей в кольцевой системе его молекулы – так называемой “клетке” [3–5]. В отличие от этих “обычных” высокоэнергетических веществ предполагаемые чисто азотные полимерные структуры с одинарной связью должны выделять энергию через распад на устойчивые азотные молекулы, поэтому для распада не требуется окислителя, а выделение энергии является экологически чистым процессом. Благодаря компактности и высокой энергоемкости полимерный атомарный азот смог бы потеснить традиционные способы хранения энергии – аккумуляторы высокой емкости и водород.

Теоретические расчеты, проведенные к настоящему моменту, показывают множественность возможных фаз немоллекулярного азота при высоких давлениях [6–16], однако среди 3D немоллекулярных кристаллов в отсутствии внешнего давления предсказывается устойчивость только для фаз cg-N [6], Pccp [15] и TrigN [16]. Теоретически предложенная в работе [6] фаза, названная кубической Гош фазой азота (cg-N), является наиболее энергетически выгодной из всех изученных немоллекулярных структур при давлениях, меньших 150 ГПа [14–16]. Также в отсутствии внешнего давления была предсказана устойчивость 1D фазы азота со структурой, подобной углеродным нанотрубкам малого диаметра [17].

В 2004 году [18] были представлены первые результаты по созданию прозрачной полимерной фазы азота со связями первого порядка при давлении выше 110 ГПа и температуре выше 2000 К, имеющей кубическую Гош структуру, предсказанную в рабо-

¹⁾e-mail: ksgrishakov@yahoo.com

те [6]. Это состояние экспериментально идентифицируется методами рентгеновской дифракции, а также по рамановским спектрам. Во всех экспериментах попытки декомпрессии образцов до нормального давления приводили к разрушению немоллекулярной фазы.

Впоследствии удалось экспериментально синтезировать и другие азотные аллотропы. При давлении выше 140 ГПа была получена фаза азота со структурой черного фосфора [19]; в диапазоне давлений 120–180 ГПа была синтезирована слоистая полимерная фаза азота LP-N [20], аналогичная предсказанной теоретически фазе Pba2 [13]; а при давлении порядка 244 ГПа была получена гексагональная слоистая полимерная фаза азота HLP-N [21].

Несмотря на активные исследования, до настоящего времени не удалось экспериментально получить чисто азотные структуры, устойчивые при условиях, близких к нормальным, за исключением регистрации sg-N фазы азота внутри углеродных нанотрубок [22]. Причины потери устойчивости свободной полимерной немоллекулярной фазы азота до конца не ясны, несмотря на значительные усилия. Например, расчетный фононный спектр sg-N фазы (в отсутствии давления) указывает на ее устойчивость, которой в экспериментах нет. Поэтому одним из важных направлений работы является поиск новых фаз полимерного немоллекулярного азота, устойчивых в области низких давлений. Исследования в данном направлении помогут лучше понять фазовую диаграмму азота в области низких давлений, а также установить взаимосвязи между структурой и свойствами различных фаз, что будет стимулировать дальнейшие фундаментальные экспериментальные и теоретические исследования метастабильных азотных фаз как возможных высокоэффективных представителей HEDM.

В настоящей работе с использованием современных эволюционных алгоритмов удалось обнаружить новую метастабильную трехмерную кристаллическую фазу азота, устойчивую в отсутствии внешнего давления. Детально описаны ее геометрические, электронные, фононные, механические и энергетические свойства. Проведено сопоставление основных свойств обнаруженной фазы азота с известными в литературе и теоретически устойчивыми при низких давлениях азотными структурами sg-N, TrigN и Resp.

Методика расчета. Для поиска и предсказания новых азотных структур использовался эволюционный алгоритм, реализованный в программе USPEX [23–25]. Эволюционный алгоритм запускался для пе-

риодической ячейки кристалла, содержащей 16 атомов, в диапазоне давлений 20–40 ГПа.

Расчеты энергетических, механических, электронных и фононных свойств кристаллических структур при различных значениях внешнего гидростатического давления проводились в рамках теории функционала плотности с использованием базиса плоских волн в программе Quantum ESPRESSO 6.4.1 [26, 27]. При проведении расчетов использовались обменно-корреляционный функционал PBEsol, сохраняющий норму псевдопотенциала [28], энергия обрезания составляла 90 Ry. В обратном пространстве использовалась сетка с расстоянием между точками, меньшим, чем 0.025 \AA^{-1} по каждой из координат.

Для вычисления упругих постоянных к отрелаксированной кристаллической структуре при заданном значении внешнего гидростатического давления прикладывались малые относительные деформации $\delta = 0.005$. Затем выполнялась релаксация атомных координат для фиксированной деформированной ячейки кристалла. Расчет тензора упругости C_{iklm} проводился из соотношения между тензором напряжений σ_{ik} и тензором деформаций u_{lm} в области действия закона Гука: $\sigma_{ik} = C_{iklm} \cdot u_{lm}$. Учет симметрии кристаллической решетки позволяет существенно уменьшить число независимых упругих постоянных. Кристаллы, обладающие гексагональной симметрией, описываются 5 упругими постоянными: $C_{11}, C_{12}, C_{13}, C_{33}, C_{44}$, при этом $C_{66} = (C_{11} - C_{12})/2$.

Результаты. В результате использования эволюционного алгоритма в диапазоне давлений 20–40 ГПа была предсказана новая азотная структура, полностью основанная на связях первого порядка. Обнаруженная фаза с точностью до 10^{-6} \AA имеет симметрию P-62c. Ее элементарная ячейка имеет гексагональную кристаллическую решетку и содержит 8 атомов азота, расположенных в виде двух плоских Y-образных элементов, состоящих из 4 атомов каждый. Элементарная ячейка предсказанного кристалла, а также его суперъячейки $1 \times 2 \times 3$ и $3 \times 3 \times 3$ представлены на рис. 1.

В Y-образном элементе длина связи между атомами одинакова, l_0 (на рис. 1 изображена черным цветом) и угол между связями составляет 120° и не зависит от давления. Между собой Y-образные элементы соединяются связью l_1 (на рис. 1 изображена синим цветом), отличной от l_0 , при этом углы α (угол между атомами 1, 2, 3, а также атомами 2, 3, 4, отмеченными на рис. 1b) и β (угол между атомами 3, 2, 5, отмеченными на рис. 1b) зависят от давления. Значения l_0, l_1, α и β при различных давлениях приведе-

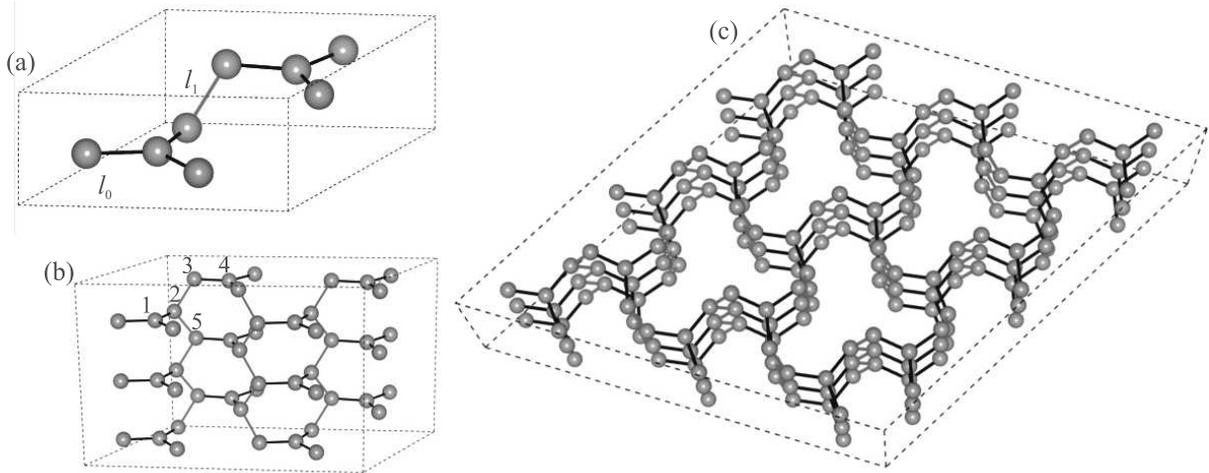


Рис. 1. (Цветной онлайн) Геометрия кристаллической решетки азотной фазы P-62c: (a) – элементарная ячейка; (b) – суперъединица $1 \times 2 \times 3$; (c) – суперъединица $3 \times 3 \times 3$. Синими линиями изображены связи с длиной l_1 , черными линиями – связи с длиной l_0

Таблица 1. Геометрические параметры структуры P-62c в диапазоне давлений $P = 0 \div 40$ ГПа

Параметр	$P = 0$ ГПа	$P = 10$ ГПа	$P = 20$ ГПа	$P = 30$ ГПа	$P = 40$ ГПа
$l_0, \text{Å}$	1.38986	1.38071	1.37280	1.36570	1.35919
$l_1, \text{Å}$	1.44407	1.42873	1.41620	1.40545	1.39599
$\alpha, ^\circ$	117.4717	116.8605	116.4134	116.0652	115.7827
$\beta, ^\circ$	107.8126	108.0062	108.1802	108.3359	108.4744

ны в табл. 1. В отличие от фазы P-62c, элементарная ячейка sg-N содержит 4 атома, а связи между атомами характеризуются всего двумя параметрами: длиной связи l и углом между связями γ . Значения l и γ при различных значениях внешнего давления приведены в табл. 2. Структура sg-N более однородна по длине и ориентации связей атомов азота в сравнении со структурой P-62c.

Для того, чтобы кристаллическая структура была устойчивой, необходимо, чтобы (а) все ее фоновые моды имели положительные частоты для всех волновых векторов (динамическая устойчивость) и (б) выполнялся критерий механической устойчивости кристаллической решетки. При наличии внешнего гидростатического давления и выбранном методе определения тензора упругости (см. раздел “Методика расчета”) для гексагональной решетки условия механической устойчивости имеют вид [29]:

$$C_{44} > 0; C_{11} > C_{12}; \frac{C_{33}}{2}(C_{11} + C_{12}) > C_{13}^2. \quad (1)$$

Рассчитанные фоновые спектры и плотности числа фоновых состояний (PhDOS) для фазы P-62c в интервале давлений от 0 до 60 ГПа показали, что мнимые частоты в спектре появляются при давлени-

ях, начиная от 40 ГПа и выше. Представленные на рис. 2а фоновый спектр и PhDOS демонстрируют динамическую устойчивость азотной фазы P-62c при отсутствии внешнего давления. Полученные зависимости упругих постоянных от давления для структуры азота P-62c изображены на рис. 2б. Видно, что при давлении порядка 53 ГПа упругая постоянная C_{12} становится больше, чем C_{11} , что согласно критерию (1) означает нарушение механической устойчивости для данной кристаллической решетки. Таким образом, необходимое и достаточное условие устойчивости фазы P-62c выполняется для давлений, меньших 40 ГПа.

Для описания механических свойств фазы P-62c были рассчитаны модули упругости (модуль объемного сжатия K , модуль Юнга E , модуль сдвига G) и коэффициент Пуассона ν . Их зависимости от давления приведены на рис. 3. Отметим, что модуль объемного сжатия практически линейно возрастает при увеличении давления, а модуль Юнга, модуль сдвига и коэффициент Пуассона достигают максимального значения при давлениях порядка 20, 15 и 40 ГПа соответственно. Отметим, что фаза sg-N характеризуется большим сопротивлением сжатию (предсказываемые значения ее модуля объемного сжатия при

Таблица 2. Геометрические параметры структуры *cg-N* в диапазоне давлений $P = 0 \div 40$ ГПа

Параметр	$P = 0$ ГПа	$P = 10$ ГПа	$P = 20$ ГПа	$P = 30$ ГПа	$P = 40$ ГПа
l , Å	1.40050	1.39074	1.38229	1.37484	1.36815
γ , °	114.1870	113.7371	113.3192	112.9300	112.5667

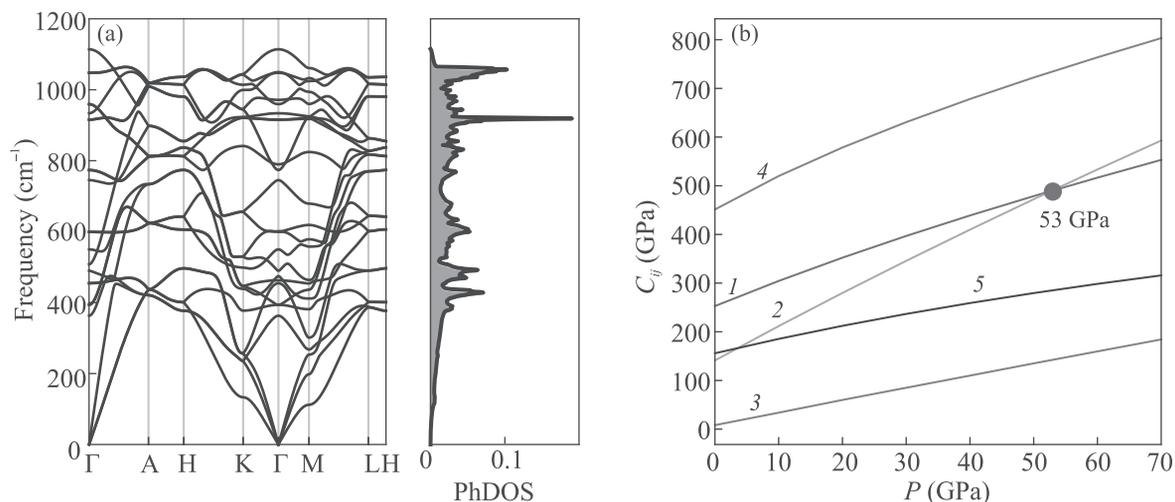


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Фонный спектр и плотность числа фонных состояний для фазы P-62с при нулевом давлении. (б) – Зависимость упругих постоянных от давления для кристаллической структуры азота P-62с: 1 – C_{11} , 2 – C_{12} , 3 – C_{13} , 4 – $C_{33}/2$, 5 – C_{44}

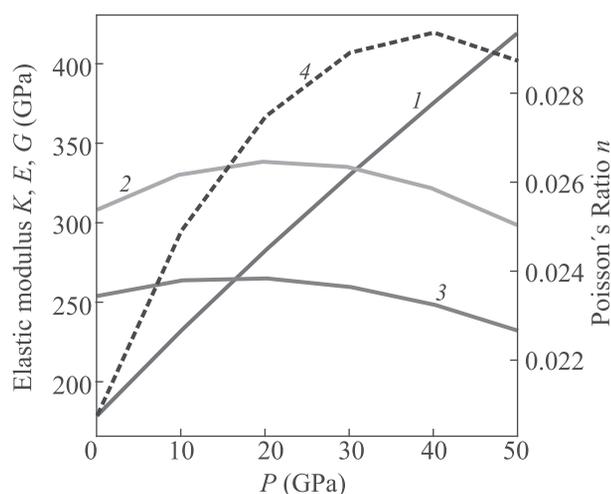


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость модулей упругости (1 – K , 2 – E , 3 – $2G$) и коэффициента Пуассона n (кривая 4, штриховая линия, правая ось Y) от давления для кристаллической структуры азота P-62с

нулевом давлении лежат в диапазоне 300–340 ГПа [30]) по сравнению с фазой P-62с.

На рисунке 4 представлены электронная зонная структура и плотность числа состояний для фазы P-62с при нулевом давлении. Исходя из представленных данных, кристаллическая фаза азота P-62с мо-

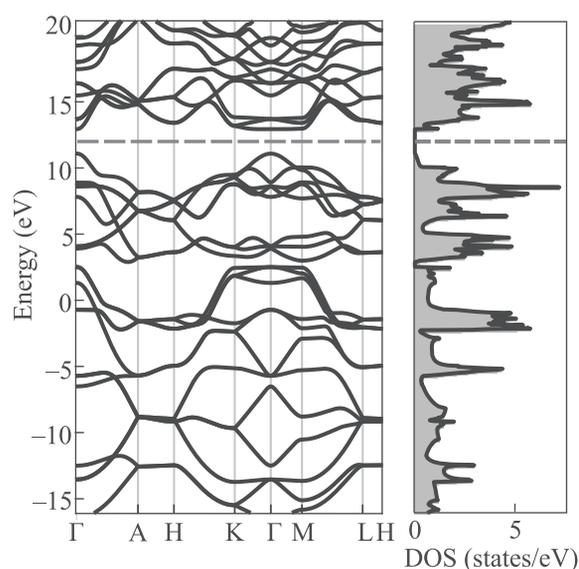


Рис. 4. (Цветной онлайн) Электронная зонная структура и плотность числа электронных состояний (DOS) для фазы P-62с при давлении $P = 0$ ГПа. Красной пунктирной линией на рисунке отмечена энергия Ферми

жет быть отнесена к классу прямозонных полупроводников с шириной запрещенной зоны $E_g = 1.85$ эВ в отсутствие давления.

Представляет интерес сопоставление электронных и энергетических свойств новой фазы P-62с с ранее предсказанными фазами *cg-N*, *Pccn*, *TrigN*, также устойчивыми в отсутствии внешнего давления. Сравнение ширины запрещенной зоны E_g данных азотных структур (см. рис. 5) показывает, что в диа-

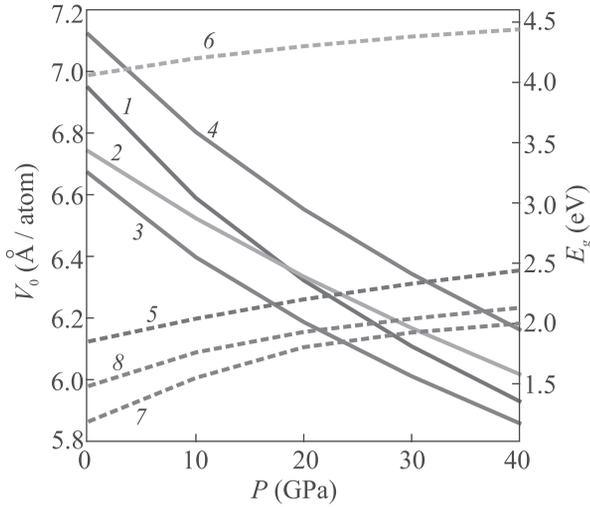


Рис. 5. (Цветной онлайн) Зависимости объема V_0 , приходящегося на один атом (левая ось Y , сплошные кривые), и ширины запрещенной зоны E_g (правая ось Y , штриховые кривые) от давления для 4 устойчивых азотных структур: 1 и 5 – P-62с; 2 и 6 – *cg-N*; 3 и 7 – *Pccn*; 4 и 8 – *TrigN*

пазоне $P = 0 \div 40$ ГПа величина E_g для всех фаз принимает наименьшее значение при нулевом давлении и с ростом давления увеличивается. Фаза *cg-N* проявляет себя как изолятор и имеет существенно большую ширину запрещенной зоны ~ 4 эВ по сравнению с другими рассматриваемыми фазами азота. Ширина запрещенной зоны структуры P-62с больше, чем для структур *Pccn* и *TrigN* во всем исследованном интервале давлений. Изображенные также на рис. 5 зависимости объема V_0 , приходящегося на один атом, демонстрируют, что наименьшим объемом обладает фаза *Pccn*, а наибольшим – фаза *TrigN*. При давлении ≈ 18 ГПа фазы P-62с и *cg-N* имеют одинаковое значение V_0 , при этом при меньших давлениях большим объемом на один атом обладает фаза P-62с, а при больших давлениях – структура *cg-N*.

На рисунке 6а представлен график зависимости от давления разницы в энthalпии между устойчивыми при $P = 0 \div 40$ ГПа азотными структурами и Голш фазой азота *cg-N*: $\Delta H = H_X(P) - H_{cg-N}(P)$, где $X = \text{P-62с}, \text{Pccn}, \text{TrigN}$. Голш фаза азота обладает наименьшей энthalпией среди других фаз при низких давлениях, при этом новая фаза P-62с

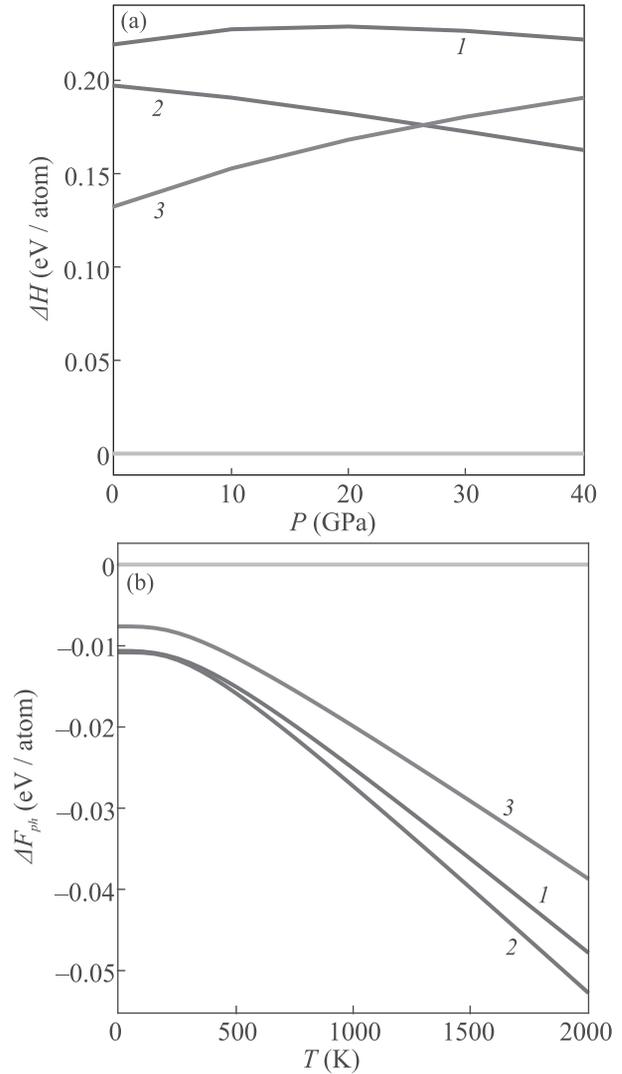


Рис. 6. (Цветной онлайн) (а) – Разница в энthalпии между фазами азота P-62с (1), *Pccn* (2), *TrigN* (3) и фазой *cg-N* как функция внешнего гидростатического давления. (б) – Разница в фоновой свободной энергии между фазами азота P-62с (1), *Pccn* (2), *TrigN* (3) и фазой *cg-N* как функция температуры

обладает наибольшей энthalпией, а следовательно, имеет потенциал к большему запасанию энергии по сравнению с другими азотными структурами. Стоит отметить, что фазы P-62с, *Pccn* и *TrigN* имеют близкие значения энthalпии: разница в энthalпии между этими фазами не превышает 0.1 эВ/атом во всем рассматриваемом интервале давлений. Все рассматриваемые фазы являются метастабильными относительно молекулярного азота для рассматриваемой области низких давлений. Расчет фоновой свободной энергии в квазигармоническом приближении при нулевом давлении и различных значени-

ях температуры (см. рис. 6b) показывает, что учет фононного вклада не изменит соотношения между фазами азота на энергетической диаграмме, представленной на рис. 6a. Энерговыведение при распаде фазы P-62c в отсутствие внешнего давления на молекулы азота, оцениваемое по формуле $\Delta E = E(\text{P-62c})/N_{at} - E(\text{N}_2)/2$, где $E(\text{P-62c})$ и $E(\text{N}_2)$ – полные энергии структуры P-62c и молекулы азота N_2 соответственно; N_{at} – полное число атомов в рассматриваемой ячейке структуры P-62c, составляет $\Delta E = 1.42$ эВ/атом.

Заключение. В данной работе теоретически предсказано существование метастабильной односвязной кристаллической фазы азота с симметрией P-62c. Данная фаза является прямозонным полупроводником и способна запастись наибольшее количество энергии среди всех предсказанных на данный момент азотных кристаллов в области низких давлений. Данная структура немолекулярного азота обладает всеми необходимыми признаками динамической (по фононному спектру) и механической (по модулям упругости) устойчивости объемной среды при давлениях, меньших 40 ГПа, в том числе при нулевом значении давления. Во всем интервале устойчивости по давлению фаза P-62c является метастабильной, поэтому для ее синтеза необходим поиск новых методов, не требующих приложения высоких давлений. Одним из дальнейших направлений работы является исследование синтеза подобных структур через возбужденные состояния (см., например, [31]).

Работа выполнена при поддержке Министерства науки и высшего образования РФ (проект государственного задания #0723-2020-0036).

1. P. C. Samartzis and A. M. Wodtke, *Int. Rev. Phys. Chem.* **25**(4), 527 (2006).
2. H. Krause, *New Energetic Materials*, John Wiley & Sons, Ltd, Weinheim, Germany (2005).
3. U. R. Nair, R. Sivabalan, G. M. Gore, M. Geetha, S. N. Asthana, and H. Singh, *Combust. Explos. Shock Waves* **41**, 121 (2005).
4. N. N. Degtyarenko, K. P. Katin, and M. M. Maslov, *Phys. Solid State* **56**, 1467 (2014).
5. K. P. Katin and M. M. Maslov, *J. Phys. Chem. Solids* **108**, 82 (2017).
6. C. Mailhot, L. H. Yang, and A. K. McMahan, *Phys. Rev. B* **46**(22), 14419 (1992).
7. M. M. G. Alemany and J. L. Martins, *Phys. Rev. B* **68**, 024110 (2003).
8. W. D. Mattson, D. Sanchez-Portal, S. Chiesa, and R. M. Martin, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 125501 (2004).

9. F. Zahariev, A. Hu, J. Hooper, F. Zhang, and T. Woo, *Phys. Rev. B* **72**, 214108 (2005).
10. A. R. Oganov and C. W. Glass, *J. Chem. Phys.* **124**, 244704 (2006).
11. F. Zahariev, J. Hooper, S. Alavi, F. Zhang, and T. K. Woo, *Phys. Rev. B* **75**, 140101(R) (2007).
12. J. Kotakoski and K. Able, *Phys. Rev. B* **77**, 144109 (2008).
13. Y. Ma, A. R. Oganov, Z. Li, Y. Xie, and J. Kotakoski, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 065501 (2009).
14. J. Sun, M. Martinez-Canales, D. D. Klug, C. J. Pickard, and R. J. Needs, *Phys. Rev. Lett.* **111**, 175502 (2013).
15. A. A. Adeleke, M. J. Greschner, A. Majumdar, B. Wan, H. Liu, Z. Li, H. Gou, and Y. Yao, *Phys. Rev. B* **96**, 224104 (2017).
16. S. V. Bondarchuk and B. Minaev, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **19**, 6698 (2017).
17. K. S. Grishakov, K. P. Katin, M. A. Gimaldinova, and M. M. Maslov, *Lett. Mater.* **9**(3), 366 (2019).
18. M. I. Eremets, A. G. Gavriluk, N. R. Serebryanaya, I. A. Trojan, D. A. Dzivenko, R. Boehler, H. K. Mao, and R. J. Hemley, *J. Chem. Phys.* **121**(22), 11296 (2004).
19. D. Laniel, B. Winkler, T. Fedotenko, A. Pakhomova, S. Chariton, V. Milman, V. Prakapenka, L. Dubrovinsky, and N. Dubrovinskaia, *Phys. Rev. Lett.* **124**, 216001 (2020).
20. D. Tomasino, M. Kim, J. Smith, and C.-S. Yoo, *Phys. Rev. Lett.* **113**, 205502 (2014).
21. D. Laniel, G. Geneste, G. Weck, M. Mezouar, and P. Loubeyre, *Phys. Rev. Lett.* **122**, 066001 (2019).
22. E. M. Benchafia, Z. Yao, G. Yuan, T. Chou, H. Piao, X. Wang, and Z. Iqbal, *Nat. Commun.* **8**, 930 (2017).
23. A. R. Oganov and C. W. Glass, *J. Chem. Phys.* **124**, 244704 (2006).
24. A. R. Oganov, A. O. Lyakhov, and M. Valle, *Acc. Chem. Res.* **44**, 227 (2011).
25. A. O. Lyakhov, A. R. Oganov, H. T. Stokes, and Q. Zhu, *Comput. Phys. Commun.* **184**, 1172 (2013).
26. P. Giannozzi, S. Baroni, N. Bonini et al. (Collaboration), *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 395502 (2009).
27. P. Giannozzi, O. Andreussi, T. Brumme et al. (Collaboration), *J. Phys.: Condens. Matter* **29**, 465901 (2017).
28. M. J. van Setten, M. Giantomassi, E. Bousquet, M. J. Verstraete, D. R. Hamann, X. Gonze, and G.-M. Rignanese, *Comput. Phys. Commun.* **226**, 39 (2018).
29. G. Grimvall, B. Magyari-Köpe, V. Ozoliņš, and K. A. Persson, *Rev. Mod. Phys.* **84**, 945 (2012).
30. M. I. Eremets, A. G. Gavriluk, N. R. Serebryanaya, I. A. Trojan, D. A. Dzivenko, R. Boehler, H. K. Mao, and R. J. Hemley, *J. Chem. Phys.* **121**, 11296 (2004).
31. V. F. Elesin, N. N. Degtyarenko, K. S. Pazhitnykh, and N. V. Matveev, *Russian Physics Journal* **52**(11), 1224 (2009).

Магнитоэлектрический эффект в пленках $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

С. С. Аплесний^{+*1)}, А. Н. Масюгин⁺, М. Н. Ситников⁺, В. А. Кецко[°], М. Н. Смирнова[°], К. И. Янушкевич[×]

⁺Сибирский государственный университет науки и технологий им. М. Ф. Решетнева, 660014 Красноярск, Россия

^{*}Институт физики им. Л. В. Киренского, обособленное подразделение Федерального исследовательского центра “Красноярский научный центр Сибирского отделения РАН”, 660036 Красноярск, Россия

[×]ГО “Научно-практический центр Национальной академии наук по материаловедению”, 220072 Минск, Беларусь

[°]Институт общей и неорганической химии им. Н. С. Курнакова РАН, 119991 Москва, Россия

Поступила в редакцию 15 сентября 2020 г.

После переработки 9 октября 2020 г.

Принята к публикации 9 октября 2020 г.

В поликристаллических пленках цериевого феррита граната найден гистерезис зависимости электрической поляризации от электрического поля. Установлен линейный и квадратичный магнитоэлектрический эффект и смена знака компонентов магнитоэлектрического эффекта тензора по температуре. Магнитоэлектрический эффект объясняется в модели флексоэлектрического взаимодействия с магнитной подсистемой за счет магнитострикции.

DOI: 10.31857/S1234567820220085

1. Введение. Пленки феррит-гранатов с редкоземельными катионами обладают потенциальной возможностью использования в магнитооптике [1–3], в том числе магнитоплазменной фотонике [4], для изготовления магнетонных кристаллов [5]. Поликристаллические пленки уступают по характеристикам своим объемным аналогам, но они обнаруживают устойчивость к процессам формирования структур микроэлектроники на их основе. Пленки феррита граната с висмутом обнаруживают магнитоэлектрический эффект (МЭ) и свойства мультиферроиков [6, 7]. В пленках $(\text{BiLu})_3(\text{FeGa})_5\text{O}_{12}$ обнаружено движение магнитных доменных границ под действием электрического поля [8] и переключение их электрической поляризации под действием магнитного поля [9], которое отсутствует на пленках с ориентацией подложки (111). Эти эффекты объясняются за счет неоднородного магнитоэлектрического взаимодействия и изменения магнитной анизотропии электрическим полем [10–11].

В пленках висмутового феррита граната с редкоземельным замещением в магнитном поле 12 кЭ в интервале температур 80–380 К найден линейный и квадратичный магнитоэлектрический эффект, компоненты тензора которого зависят от типа подложки [12]. В пленках $\text{Bi}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (BIG) толщиной 90 нм методом ферромагнитного резонанса найден линейный МЭ с максимумом при 450 К, который объясняется

за счет образования локальной магнитной неоднородности и напрямую связан с ионами висмута [13]. Трехвалентные ионы висмута имеют неподеленную электронную пару в $6s^2$ состоянии и изменение электронной плотности на Bi^{3+} вызовет изменение длины Bi-O связи и смещение ионов кислорода, через который осуществляется косвенный обмен между катионами железа.

Для выяснения роли ионов висмута в МЭ необходимо провести исследования магнитоэлектрического взаимодействия в феррите граната с редкоземельными элементами. Например в $\text{Y}_{3-x}\text{Ce}_x\text{Fe}_5\text{O}_{12}$, который обладает колоссальным эффектом Фарадея в ближней ИК области [14, 15]. Исследования магнитооптических и магнитоэлектрических свойств на пленках $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ отсутствуют.

Цель работы – выяснить механизм магнитоэлектрического взаимодействия в поликристаллической пленке $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$.

2. Рентгеноструктурный анализ и электрическая поляризация. Слои номинального состава $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ были получены методом ионно-лучевого распыления компактированных мишеней в виде смесей оксидов соответствующих металлов, весовые надбавки в которых определялись соотношением $\text{Ce}:\text{Fe} = 3:5$ на подложку галлий-гадолинового граната (GGG) [16]. Для стабилизации условий осаждения заданного катионного стехиометрического состава проводилась предварительная операция распыления мишени, длительность которой составляла

¹⁾e-mail: apl@iph.krasn.ru

от 100 до 150 мин и определялась на основе предварительных данных о катионном составе полученного осадка на тестовых подложках коммерческого кремния. Быстрый отжиг производился для предотвращения нежелательных диффузионных изменений в области интерфейсных границ. Пленка толщиной 400 нм поликристаллическая со средним размером зерна 60–70 нм, разупорядоченная, но упругосвязанная с подложкой GGG. Сравнительный анализ элементного состава подложки и пленки на подложке методом ХРИ (анализа характеристического рентгеновского спектра, возбуждаемого радиоактивным изотопом америция) показал, что по сравнению с подложкой в слое содержатся атомы железа и церия.

Рентгенограмма пленки $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ представлена на рис. 1. Пленка $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ обладает кубической

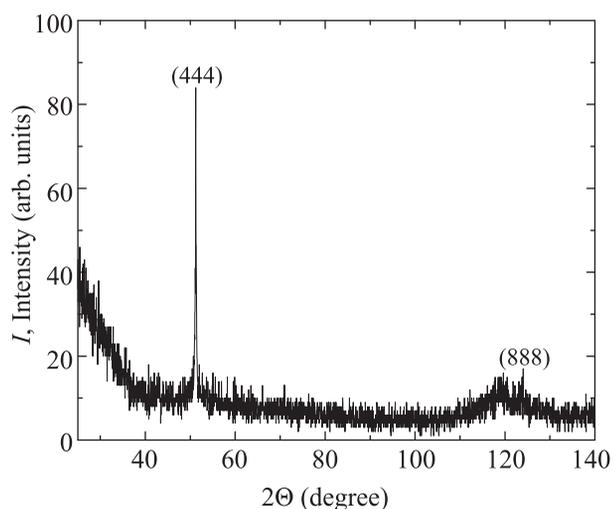


Рис. 1. Рентгенограмма пленки $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

структурой с пространственной группой S.G.: Ia3d (230) с преимущественной ориентацией в направлении (444). Параметр a элементарной кубической ячейки пленки имеет величину $a = 1.234$ нм. Кристаллическая структура пленки заметно деформирована ($\Delta a = a_{\text{substrate}} - a_{\text{film}} = 0.05$ Å). В процентном отношении различие между параметрами решетки пленки и подложки составляет $\sim 0.4\%$.

Изменение электрической поляризации от температуры определим из тока, измеренного без электрического поля (вставка к рис. 2), $\Delta P = \int j dt$. Поляризация вызвана упругими напряжениями в пленке вблизи интерфейса. В этой области исчезает центр инверсии и в результате неоднородного флексоэлектрического взаимодействия индуцируется поляризация (рис. 2). В интервале температур 160–450 К температурная зависимость поляризации хорошо описы-

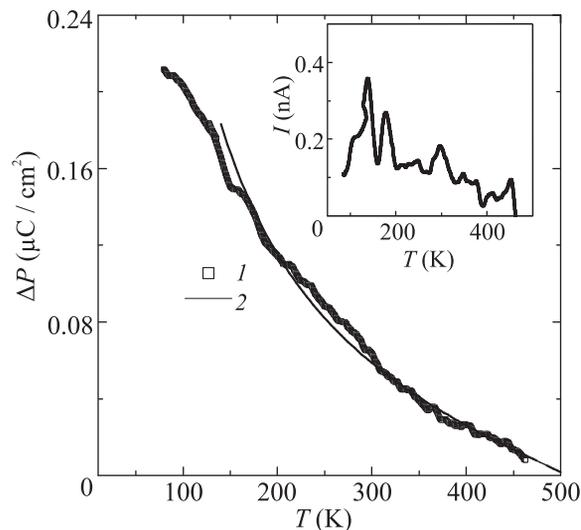


Рис. 2. Электрическая поляризация от температуры: эксперимент (1) и теоретические расчеты согласно уравнению (3) (2). Вставка: пироток от температуры

вается магнитоупругим взаимодействием и упругим напряжением со стороны подложки. Теоретическая зависимость $\Delta P(T)$ будет обсуждаться ниже.

Электрическая поляризация $P(E, H)$ от электрического и магнитного полей определялась по нормали к пленки из соотношения $P = \int j dt$ при измерении тока во внешнем квазипериодическом поле с частотой $\omega = 0.01$ Гц. В интервале температур 80–160 К зависимость электрической поляризации пленки от электрического поля обнаруживает гистерезис (рис. 3а), полуширина которого определяет спонтанную поляризацию ~ 0.03 мкКл/см². Выше 160 К небольшой гистерезис наблюдается в области промежуточных полей, который обусловлен частичной компенсацией электрического поля диполей сводными носителями тока. Поляризация $P = P_0 \sin(\omega t)$ совпадает по фазе с внешним полем $E_{\text{ex}} = E_{0\text{ex}} \sin(\omega t)$ и удовлетворительно описывает экспериментальные результаты. Гистерезис вызван доменной структурой при изменении ориентации намагниченности ниже 160 К.

3. Магнитоэлектрический эффект. Электрическая поляризация от магнитного поля измерялась при двух ориентациях поля относительно пленки. На рисунке 4 представлены зависимости $P(H)$ для поликристаллической пленки $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ в интервале температур 80–360 К. Электрическая поляризация пленки, индуцируемая магнитным полем, описывается суммой линейного и квадратичного МЭ взаимодействия в магнитном поле:

$$P = \alpha H + \frac{\gamma H^2}{(1 + dH^2)}. \quad (1)$$

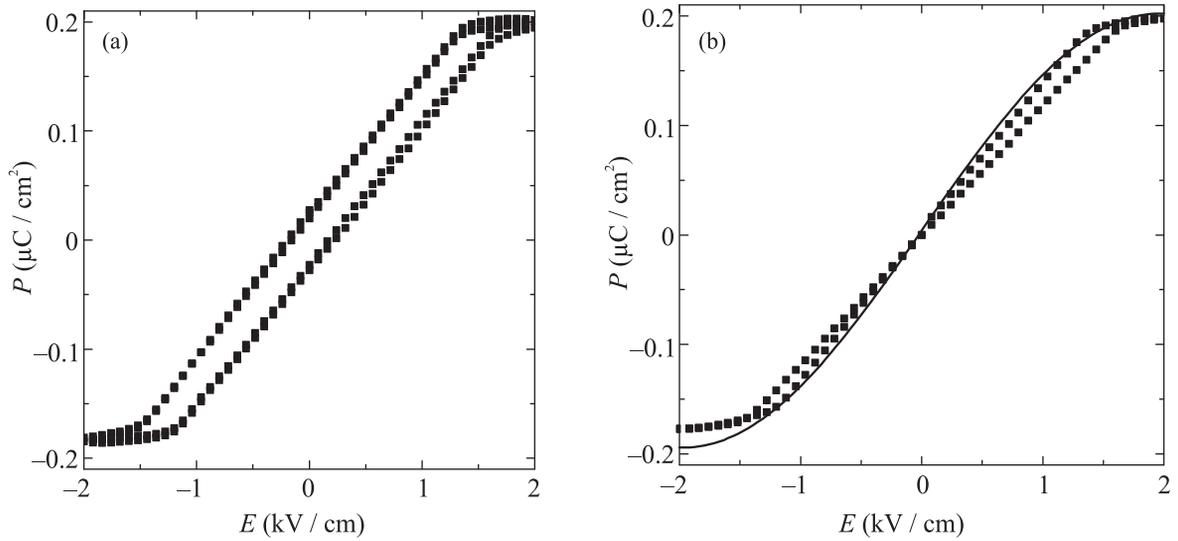


Рис. 3. Электрическая поляризация от электрического поля при двух циклах измерения при $T = 80$ К (а), 200 К (б). Подгоночная функция $P = P_0 \sin(\omega t)$ (сплошная линия) (б)

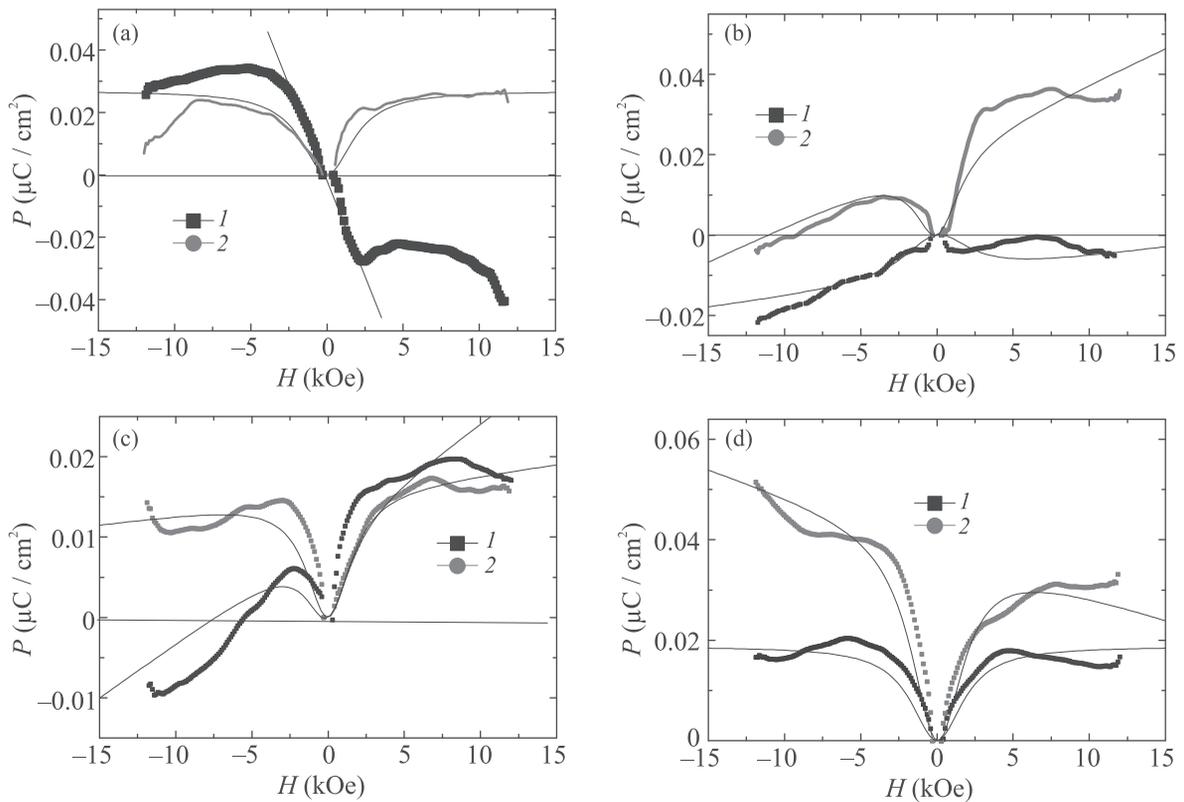


Рис. 4. (Цветной онлайн) Электрическая поляризация пленки $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ от магнитного поля, направленного по нормали к пленке (1) и вдоль пленки (2) при температурах $T = 120$ К (а), 160 К (б), 280 К (с), 360 К (д). Подгоночная функция уравнения (1) (сплошная линия)

Функция (1) удовлетворительно описывает экспериментальные результаты $P(H)$. Превалирование линейного и квадратичного вклада в МЭ определим

из соотношения поляризации, измеренной при инверсии знака магнитного поля. На рисунке 5 приведена электрическая поляризация пленки $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$

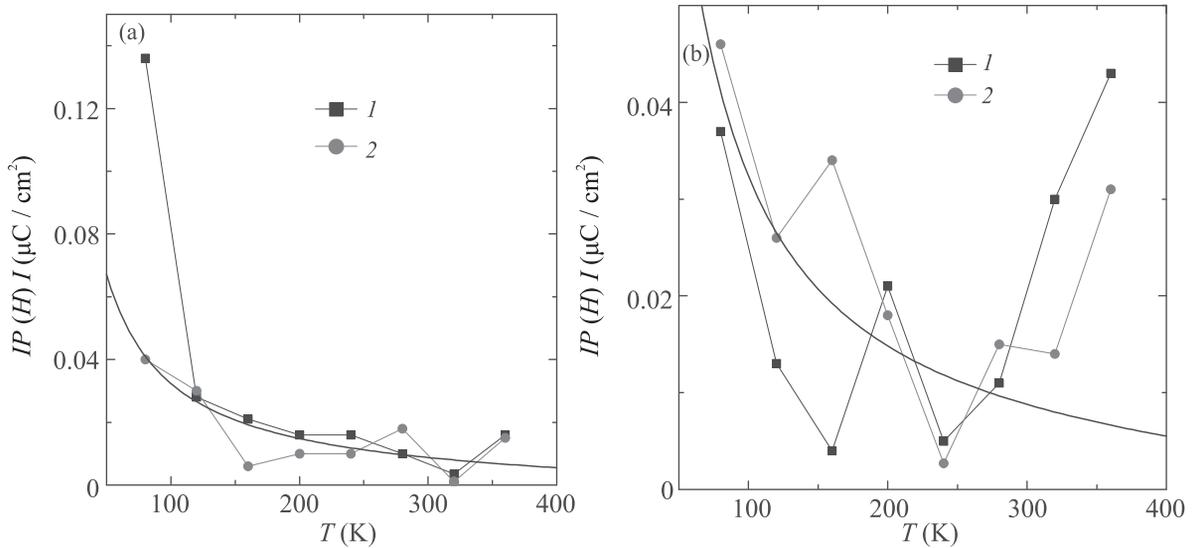


Рис. 5. (Цветной онлайн) Модуль электрической поляризации пленки $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ от температуры в магнитном поле 12 кЭ, направленном по нормали к пленке (а) и вдоль пленки (б) в полях $H = -12$ кЭ (1), $+12$ кЭ (2). Подгоночная функция $AH(1 - T/T_c)^\beta/T$ с параметром $A = 1.6$ (сплошная линия)

в магнитном поле 12 кЭ, направленном по нормали к пленке (диагональная компонента тензора) и вдоль пленки (недиагональная компонента тензора). До 160 К преобладает линейный МЭ с диагональной компонентой тензора, от 160 до 240 К с недиагональной компонентой. Квадратичный МЭ с диагональной компонентой γ преобладает выше 160 К, а с недиагональной компонентой γ ниже 160 К. Возможно, это связано со спин-переориентационным переходом при 160 К. Так в $(\text{Y}_{1-x}\text{Ce}_x)\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ наблюдался спин-переориентационный переход при 170 К [17]. Микроскопический механизм взаимодействия намагниченности и электрической поляризации происходит через решетку и связан с магнитоупругим взаимодействием. Температурная зависимость линейного вклада в МЭ, вычисленного из уравнения (9), качественно описывает экспериментальные результаты до комнатных температур.

Коэффициент магнитоэлектрического взаимодействия $\Delta P/\Delta H$ в поле 12 кЭ в пленке $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ в несколько раз превышает $\Delta P/\Delta H = 2 \cdot 10^{-4}$ Кл/($\text{м}^2\text{T}$) в поликристаллической пленке $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ на монокристаллической подложке GGG, выращенной в кристаллографическом направлении (111) до температуры 160 К [12]. Нагрев выше 160 К уменьшает коэффициент МЭ в $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ по сравнению с $\text{Nd}_{0.5}\text{Bi}_{2.5}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ [12].

4. Модель. Электрическую поляризацию и МЭ объясним в модели неоднородной деформации кристаллической структуры вблизи интерфейса пленка-

подложка, в результате различия между параметрами решеток пленки и подложки. В пленке в результате градиента деформации возникает электрическая поляризация и неоднородный МЭ. Ситуация аналогична индуцируемому линейному МЭ в объемном кристалле $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ в электрическом постоянном поле 750 В/мм [18]. В поле понижается симметрия кристалла, исчезает центр инверсии и индуцируется электрическая поляризация по направлению электрического поля. Электрическая поляризация в окрестности интерфейса создает электрическое поле в пленке $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ и приводит к понижению кристаллической симметрии.

Энергию пленки в некоторой области вблизи подложки представим феноменологически без тензорной записи и суммирования по узлам решетки в виде суммы энергий: энергия поля деформаций (U), создаваемых в результате напряжения со стороны подложки (σ) $E_1 = A_\sigma U \sigma$, энергия взаимодействия электрической поляризации (P) при полярном смещении ионов с деформациями $E_2 = -A_P U P$, магнитоупругая энергия, связанная с изменением обменного взаимодействия (J_1) между ионами церия и железа при деформациях $E_3 = A_M U M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}}$, обменные энергии $E_4 = -J_1 M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}} - J_2 M_{\text{Fe}} M_{\text{Fe}}$ и упругая энергия решетки $E_5 = 1/2 k U^2$:

$$W = A_\sigma U \sigma - A_P U P + A_M U M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}} - J_1 M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}} - J_2 M_{\text{Fe}} M_{\text{Fe}} + 1/2 k U^2. \quad (2)$$

Минимизация энергии (2) относительно деформации дает $U_m = (-A_\sigma\sigma + A_P P - A_M M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}})/k$. Выражение энергии (2) после подстановки U_m сводится к виду:

$$W = -A_\sigma\sigma^2 - A_P P^2 - A_M (M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}})^2 + 2A_P A_M P M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}} - 2A_\sigma A_M \sigma M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}} + 2A_\sigma A_P \sigma P - J_1 M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}} - J_2 M_{\text{Fe}} M_{\text{Fe}}. \quad (3)$$

К магнитной энергии добавляется биквадратный обмен и магнитоэлектрическое взаимодействие в виде $P M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}}$. Такой инвариант может быть и в центросимметричном кристалле в магнитоупорядоченных веществах с несколькими подрешетками. В этом случае инвариант может быть записан в виде суммы по различным магнитным подрешеткам [19]:

$$f_{ME}^{\text{lin}} = -\frac{1}{2} \sum_{ss'} \gamma_{ss'}^{ijk} P^i M_s^j M_{s'}^k. \quad (4)$$

Минимизация энергии (3) по поляризации приводит к выражению:

$$P = A_\sigma\sigma + A_M (M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}}). \quad (5)$$

Зависимость поляризации от температуры определяется напряжением со стороны подложки, температурную зависимость которого качественно можно выразить через коэффициент теплового расширения подложки. В Ce: YIG/GGG коэффициент теплового расширения пленки (α) растет быстрее по сравнению с подложкой при $T > 170$ К, проходит через максимум при 210 К и меняет знак при 284 К [17]. Аппроксимируем $\alpha(T) \sim \sigma(T) \sim (284 - T)$. В ферритах-гранатах легких редкоземельных элементов кривые намагниченности $M(T)$ имеют вейсовский вид при низких температурах. В $\text{Yb}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ температура компенсации $T_k = 5$ К, магнитные моменты ионов Ce^{3+} и Yb^{3+} совпадают. В пленке Ce: YIG/GGG намагниченность насыщения увеличивается на 30% при охлаждении от 300 до 80 К. Поэтому можно предположить, что обменное взаимодействие между ионами церия и железа $J_1 \ll J_2$, обменное поле λM_{Fe} на ионе церия на порядок меньше, чем на ионах железа и намагниченность подрешетки ионов церия $M_{\text{Ce}} \sim \lambda M_{\text{Fe}}/T$. Намагниченность ионов железа представим в степенном виде $M_{\text{Fe}} \sim (1 - T/T_c)^\beta$. Температурная зависимость коррелятора $(M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}}) \sim \lambda(1 - T/T_c)^{2\beta}/T$ и подгоночная функция для $\Delta P(T)$:

$$\Delta P = A(284 - T) + B(1 - T/T_c)^{2\beta}/T \quad (6)$$

хорошо описывает экспериментальные данные с двумя параметрами $B = 0.3$, $A = 0.5 \cdot 10^{-6}$, $\beta = 0.35$, $T_c = 550$ К выше температуры спин-переориентационного перехода 160 К. Переориентация намагниченности из плоскости пленки (анизотропия типа легкая плоскость) к направлениям вдоль диагоналей куба [111] при охлаждении объясняется увеличением магнитоупругой и магнитокристаллической энергий анизотропий, по сравнению с анизотропией формы [17]. Вырождение по направлениям осей вдоль диагоналей куба приводит к образованию доменной структуры и к гистерезису в полевой зависимости $P(E)$.

Линейная зависимость поляризации от магнитного поля обусловлена линейной зависимостью антиферромагнитного коррелятора $(M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}})$ и констант обменной магнитострикции в $\text{R}_x\text{Y}_{3-x}\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ от поля [20]. В малых полях (много меньших обменного поля, но больше поле насыщения) температуру Кюри представим в виде $T_c(H) = T_c(0) + \delta H$, тогда $M_{\text{Ce}} \sim (\lambda M_{\text{Fe}} + H)/T$, $M_{\text{Fe}} \sim (1 - T/(T_c + \delta H))^\beta$. Изменение поляризации в магнитном поле определим из (5):

$$\Delta P = A_M [(M_{\text{Ce}}(H) M_{\text{Fe}}(H)) - (M_{\text{Ce}} M_{\text{Fe}})]. \quad (7)$$

После разложения в ряд Тейлора по малому параметру δH получим:

$$\Delta P = \frac{A_M H \lambda M_{\text{Fe}}^2(H=0) \delta}{T_c^2 \left(1 - \frac{T}{T_c}\right)} + \frac{M_{\text{Fe}}(H=0) H}{T}. \quad (8)$$

Первый член на два порядка меньше и (8) представим в простом виде:

$$\Delta P = A_M H M_{\text{Fe}}(H=0)/T = A H (1 - T/T_c)^\beta / T. \quad (9)$$

Поляризация в магнитном поле 12 кЭв в зависимости от температуры (рис. 5) качественно описывается выражением (9). Основной микроскопический механизм образования МЭ связан со спин-решеточным взаимодействием, как и в системе Sr_2O_3 с ромбоэдрической примитивной ячейкой найден спин-решеточный 76% и спин-электронный 23% вклад [21].

5. Выводы. Несовпадение параметров элементарной ячейки подложки и пленки приводит к электрической поляризации в результате градиента деформации решетки. Найден гистерезис электрической поляризации и два вклада в МЭ: линейный и квадратичный. Линейный МЭ объясняется в модели градиента деформации с полярным смещением ионов и обменной магнитострикцией между редкоземельными ионами и ионами железа.

Авторы признательны А. И. Стогнию из Научно-практического центра по материаловедению НАН Беларуси за предоставленные образцы.

Исследование выполнено при финансовой поддержке Российского фонда фундаментальных исследований, Правительства Красноярского края, Красноярского краевого фонда науки в рамках научно-го проекта # 18-42-240001 “Инверсия знака компонент магнитоэлектрического тензора по температуре в пленках висмутового феррита граната, замещенного неодимом” и частично поддержано грантом Российского фонда фундаментальных исследований # 19-08-00643.

1. X. Ma, J. Mater. Sci. Mater. Electron. **11**, 351 (2000).
2. M. C. Onbasli, T. Goto, X. Sun, N. Huynh, and C. A. Ross, Opt. Express **22**, 25183 (2014).
3. M. Huang and S-Y. Zhang, Appl. Phys. A **74**, 177 (2002).
4. M. Vasiliev, P. C. Wo, K. Alameh, P. Munroe, Z. Xie, V. A. Kotov, and V. I. Burkov, J. Phys. D: Appl. Phys. **42**, 135003 (2009).
5. A. B. Ustinov, A. V. Drozdovskii, A. A. Nikitin, A. A. Semenov, D. A. Bozhko, A. A. Serga, B. Hillebrands, E. Lähderanta, and B. A. Kalinikos, Communications Physics **2**, 1 (2019).
6. D. P. Kulikova, A. P. Pyatakov, E. P. Nikolaeva, A. S. Sergeev, T. B. Kosykh, Z. A. Pyatakova, A. V. Nikolaev, and A. K. Zvezdin, JETP Lett. **104**, 197 (2016).
7. D. P. Kulikova, T. T. Gareev, E. P. Nikolaeva, T. B. Kosykh, A. V. Nikolaev, Z. A. Pyatakova, A. K. Zvezdin, and A. P. Pyatakov, Physica Status Solidi (RRL) – Rapid Research Letters **12**, 1800066 (2018).
8. A. S. Logginov, G. A. Meshkov, A. V. Nikolaev, and A. P. Pyatakov, JETP Lett. **86**, 115 (2007).
9. A. P. Pyatakov, D. A. Sechin, A. S. Sergeev, A. V. Nikolaev, E. P. Nikolaeva, A. S. Logginov, and A. K. Zvezdin, EPL **93**, 17001 (2011).
10. A. S. Sergeev, J. Phys.: Conf. Ser. **929**, 012085 (2017).
11. A. F. Kabychenkov, F. V. Lisovskii, and E. G. Mansvetova, JETP Lett. **97**, 265 (2013).
12. S. S. Aplesnin, A. N. Masyugin, M. N. Sitnikov, and T. Ishibashi, JETP Lett. **110**, 223 (2019).
13. E. Popova, A. Shengelaya, D. Daraselia, D. Japaridze, S. Cherifi-Hertel, L. Bocher, A. Gloter, O. Stéphan, Y. Dumont, and N. Keller, Appl. Phys. Lett. **110**, 142404 (2017).
14. M. Huang and S-Y. Zhang, Appl. Phys. A **74**, 177 (2002).
15. M. C. Onbasli, L. Beran, M. Zahradnik, M. Kučera, R. Antoš, J. Mistrik, G. F. Dionne, M. Veis, and C. A. Ross, Sci. Rep. **6**, 23640 (2016).
16. G. D. Nipan, A. I. Stognij, and V. A. Ketsko, ChemInform Abstract: Oxide Ferromagnetic Semiconductors. Coatings and Films ChemInform **44** (2013).
17. E. Lage, L. Beran, A. U. Quindeau, L. Ohnoutek, M. Kucera, R. Antos, S. R. Sani, G. F. Dionne, M. Veis, and C. A. Ross, APL Mater. **5**, 036104 (2017).
18. T. H. O’Dell, The Philosophical Magazine: A Journal of Theoretical, Experimental and Applied Physics **16**, 487 (1967).
19. А. П. Пятаков, А. К. Звездин, УФН **182**, 593 (2012).
20. А. К. Звездин, В. М. Матвеев, А. А. Мухин, А. И. Попов, *Редкоземельные ионы в магнито-упорядоченных кристаллах*, Наука, М. (1985), 296 с.
21. A. Malashevich, S. Coh, I. Souza, and D. Vanderbilt, Phys. Rev. B **86**, 094430 (2012).

Can the highly symmetric $SU(4)$ spin-orbital model be realized in $\alpha\text{-ZrCl}_3$?

A. V. Ushakov⁺, I. V. Solovyev^{+* \times} , S. V. Streltsov^{+*1)}

⁺Institute of Metal Physics, Russian Academy of Sciences, 620041 Ekaterinburg, Russia

^{*}Ural Federal University, 620002 Ekaterinburg, Russia

^{\times} International Center for Materials Nanoarchitectonics, National Institute for Materials Science, 1-1 Namiki, Tsukuba, Ibaraki 305-0044, Japan

Submitted 1 October 2020

Resubmitted 12 October 2020

Accepted 18 October 2020

DOI: 10.31857/S1234567820220097

Highly symmetric models play a special role not only in the condensed matter physics, but in a whole physics. A special efforts were put into studying of highly symmetric spin and spin-orbital models, since they are important for description of magnetic materials. In particular it was shown that in case of the common-face geometry the Kugel-Khomskii spin-orbital Hamiltonian has unexpectedly high symmetry [1, 2]. Another example is the Kitaev model, which naturally appears in layered materials with the honeycomb lattice and heavy transition metal ions, such as Ir^{4+} or Ru^{3+} [3–7] with a possibility of spin-liquid ground state realization. Recently Yamada and co-authors [8] noticed that $\alpha\text{-ZrCl}_3$ with one electron residing in the relativistic $j_{\text{eff}} = 3/2$ manifold can be a physical realization of $SU(4)$ symmetric spin-orbital model.

In the present paper we performed *ab initio* study to check the hypothesis about realization of this model in $\alpha\text{-ZrCl}_3$. We used the generalized gradient approximation (GGA) [9] and projector augmented-wave (PAW) method as realized in the VASP code [10] for the calculations.

We used data of $\alpha\text{-RuCl}_3$ [6] for the structural optimization of $\alpha\text{-ZrCl}_3$ as a starting point and relaxed all possible parameters in magnetic GGA. As a result $\alpha\text{-ZrCl}_3$ dimerizes (Zr-Zr distance turns out to be smaller than in Zr metal [11]). The dimers are parallel to each other. Similar dimerization has been observed in $\alpha\text{-RuCl}_3$ under pressure [12], TiCl_3 [13] and many other titanites [14–17]. While the lowest in energy configuration corresponds to parallel dimers, the other one with arm-chair geometry is rather close in energy and one might expect that dimers might start to flow over the lattice in

$\alpha\text{-ZrCl}_3$ at temperatures ~ 500 K in the same way they do in Li_2RuO_3 [18].

We found that $\alpha\text{-ZrCl}_3$ appears to be an insulator even at the GGA level in contrast to metallic $\alpha\text{-RuCl}_3$. The lowest in energy t_{2g} orbitals looking towards each other in edge-sharing geometry form molecular orbitals and this results in strong bonding-antibonding splitting seen in the density of states plot (Fig. 1). Two electrons of the dimer occupy the bonding state leading to the non-magnetic ground state, while $\alpha\text{-RuCl}_3$ is magnetic.

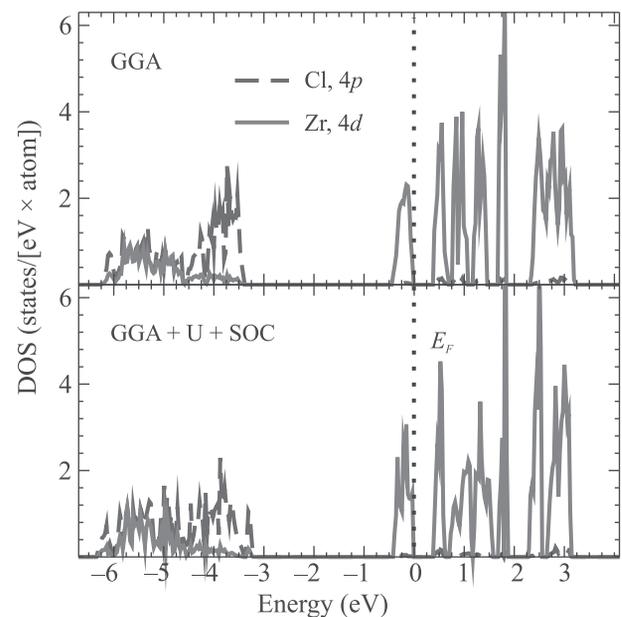


Fig. 1. (Color online) The partial densities of states of $\alpha\text{-ZrCl}_3$ calculated in the GGA and GGA + U + SOC approximations for the dimerized structure with parallel dimers

¹⁾e-mail: streltsov.s@gmail.com

Further we construct an effective five-orbital Hubbard-type model for Zr $4d$ bands using the Wannier functions technique and dimerized crystal structure, obtained from the optimization in the frameworks of GGA [19]. Without spin-orbit coupling, the t_{2g} levels are split by 8 and 186 meV, separating the lowest-middle and middle-highest levels, respectively. The spin-orbit coupling constant has been estimated to be about 70 meV. It additionally splits the lowest t_{2g} levels. Thus, the crystal field, though not particularly strong, lifts the orbital degeneracy, substantially modifies the $j_{\text{eff}} = 3/2$ character of the lowest energy states and kills $SU(4)$ invariance of the spin-orbital model.

The hopping integrals connecting occupied (o) states and unoccupied (u) states of the nearest sites i and j have been calculated to be $t_{ij}^{oo} = -1.262$ eV and $t_{ij}^{ou} = 0.136$ eV in α - $ZrCl_3$. A very large hopping between occupied orbitals results in bonding-antibonding splitting ~ 2.5 eV. Using superexchange theory and estimates for U and J_H we found exchange coupling of the Heisenberg model as rather weak $J \sim 0.26$ meV. The constrained random phase approximation (cRPA) [19] yields $U = 1.53$ and $J_H = 0.58$ eV. These values were used in the subsequent GGA + U + SOC calculations. Basically U renormalizes GGA energy differences between different solutions discussed above, but it does not change the ground state of α - $ZrCl_3$.

One may notice, that formation of molecular orbitals helps to quench orbital moment, which is tiny ($\sim 10^{-3} \mu_B$) for α - $ZrCl_3$. However, in some dimerized or trimerized structures the spin-orbit coupling may play some role [20–22].

S. Streltsov is grateful to A. Gubkin for help with analysis of structural data in [23], to H. Jeschke for consultations on the crystal optimization of α - $RuCl_3$ and especially to G. Jackeli and D.I. Khomskii for various stimulating discussions on spin-orbital physics.

This work was supported by the Russian Science Foundation through RSF 20-62-46047 research grant.

Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S002136402022004X

1. K.I. Kugel, D.I. Khomskii, A.O. Sboychakov, and S.V. Streltsov, Phys. Rev. B **91**, 155125 (2015).
2. D.I. Khomskii, K.I. Kugel, A.O. Sboychakov, and S.V. Streltsov, JETP **122**, 484 (2016).
3. G. Jackeli and G. Khaliullin, Phys. Rev. Lett. **102**, 017205 (2009).

4. S.M. Winter, A.A. Tsirlin, M. Daghofer, J. van den Brink, Y. Singh, P. Gegenwart, and R. Valenti, J. Phys. Cond. Matt. **29**, 493002 (2017).
5. H. Takagi, T. Takayama, G. Jackeli, G. Khaliullin, and S.E. Nagler, Nat. Rev. Phys. **1**, 264 (2019).
6. R.D. Johnson, S.C. Williams, A.A. Haghighirad, J. Singleton, V. Zapf, P. Manuel, I.I. Mazin, Y. Li, H.O. Jeschke, R. Valenti, and R. Coldea, Phys. Rev. B **92**, 235119 (2015).
7. J. Zheng, K. Ran, T. Li, J. Wang, P. Wang, B. Liu, Z. Liu, B. Normand, J. Wen, and W. Yu, Phys. Rev. Lett. **119**, 227208 (2017).
8. M.G. Yamada, M. Oshikawa, and G. Jackeli, Phys. Rev. Lett. **121**, 97201 (2018).
9. J.P. Perdew, K. Burke, and M. Ernzerhof, Phys. Rev. Lett. **78**, 1396 (1997).
10. G. Kresse and J. Furthmüller, Phys. Rev. B **54**, 11169 (1996).
11. S.V. Streltsov and D.I. Khomskii, Physics-Uspekhi **60**, 1121 (2017).
12. G. Bastien, G. Garbarino, R. Yadav, F.J. Martinez-Casado, R. Beltrán Rodríguez, Q. Stahl, M. Kusch, S.P. Limandri, R. Ray, P. Lampen-Kelley, D.G. Mandrus, S.E. Nagler, M. Roslova, A. Isaeva, T. Doert, L. Hozoi, A.U.B. Wolter, B. Büchner, J. Geck, and J. van Den Brink, Phys. Rev. B **97**, 241108 (2018).
13. S. Ogawa, J. Phys. Soc. Japan **15**, 1901 (1960).
14. M. Isobe, E. Ninomiya, A.N. Vasil'ev, and Y. Ueda, J. Phys. Soc. Jpn. **71**, 1423 (2002).
15. S.V. Streltsov and D.I. Khomskii, Phys. Rev. B **77**, 064405 (2008).
16. A. Seidel, C.A. Marianetti, F.C. Chou, G. Ceder, and P.A. Lee, Phys. Rev. B **67**, 20405 (2003).
17. M. Schmidt, W. Ratcliff, P.G. Radaelli, K. Refson, N.M. Harrison, and S.W. Cheong, Phys. Rev. Lett. **92**, 56402 (2004).
18. S.A.J. Kimber, I.I. Mazin, J. Shen, H.O. Jeschke, S.V. Streltsov, D.N. Argyriou, R. Valenti, and D.I. Khomskii, Phys. Rev. B **89**, 081408 (2014).
19. I.V. Solovyev, J. Phys.: Condens. Matter **20**, 293201 (2008).
20. J. Terzic, J.C. Wang, F. Ye, W.H. Song, S.J. Yuan, S. Aswartham, L.E. DeLong, S.V. Streltsov, D.I. Khomskii, and G. Cao, Phys. Rev. B **91**, 235147 (2015).
21. S.V. Streltsov, G. Cao, and D.I. Khomskii, Phys. Rev. B **96**, 014434 (2017).
22. E.V. Komleva, D.I. Khomskii, and S.V. Streltsov, arXiv:2007.15230.
23. B. Swaroop and S.N. Flengas, Can. J. Phys. **42**, 1886 (1964).

Антиферромагнитный резонанс в спин-щелевом магнетике с сильной одноионной анизотропией

В. Н. Глазков¹⁾

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

Поступила в редакцию 22 сентября 2020 г.

После переработки 21 октября 2020 г.

Принята к публикации 22 октября 2020 г.

Квазиодномерный магнетик $\text{NiCl}_2 \cdot 4\text{SC}(\text{NH}_2)_2$, сокращенно обозначаемый в литературе DTN, в нулевом магнитном поле остается неупорядоченным вплоть до $T = 0$: из-за сильной одноионной анизотропии типа “легкая плоскость”, действующей на ионы Ni^{2+} , основное состояние с $S_z = 0$ оказывается отделено щелью от возбуждений с $S_z = \pm 1$. При приложении магнитного поля вдоль главной оси анизотропии в поле выше $B_{c1} = 2.18$ Тл щель закрывается и возникает индуцированный полем антиферромагнитный порядок. В этой индуцированной полем фазе имеется две ветви возбуждений, одна из которых должна быть голдстоуновской. Недавние исследования спектра возбуждений в индуцированной полем упорядоченной фазе магнетика DTN (Г. Soldatov et al., Phys. Rev. B **101**, 104410 (2020)) обнаружили, что в спектре возбуждений индуцированной полем фазы голдстоуновская ветвь приобретает щель при небольшом отклонении приложенного магнитного поля от тетрагональной оси кристалла. В данной работе предложено простое описание обеих ветвей магнитного резонанса в упорядоченной фазе квазиодномерного квантового магнетика $S = 1$ с сильной одноионной анизотропией в рамках комбинации эффективной модели сильной связи для анизотропной спиновой цепочки и классической теории антиферромагнитного резонанса. Это описание полуколичественно воспроизводит экспериментальные результаты без дополнительных параметров.

DOI: 10.31857/S1234567820220103

Металл-органическое соединение DTN ($\text{NiCl}_2 \cdot 4\text{SC}(\text{NH}_2)_2$) является примером коллективного парамагнетика с щелевым спектром возбуждений (спин-щелевого магнетика). Магнитные ионы Ni^{2+} ($S = 1$) формируют в этом соединении одномерные цепочки, расположенные вдоль оси 4 порядка тетрагонального кристалла [1, 2]. В отличие от халдейновских магнетиков, в DTN присутствует очень сильная одноионная анизотропия, из-за которой основное состояние иона с $S_z = 0$ в нулевом поле существенно отделено от возбужденного дублета $S_z = \pm 1$. Слабое по сравнению с одноионной анизотропией гейзенберговское обменное взаимодействие между ионами оставляет основное состояние немагнитным и делает возбужденные состояния с $S_z = \pm 1$ делокализованными. При приложении магнитного поля одно из возбужденных состояний понижает свою энергию и в некотором поле из-за присутствия слабых межцепочечных взаимодействий возникает индуцированный полем антиферромагнитный порядок [3, 4].

Переход спин-щелевых магнетиков в индуцированное полем антиферромагнитное состояние широко обсуждался в контексте бозе-эйнштейновской конденсации магнонов [5, 6]. Одним из ожидаемых свойств индуцированной полем упорядоченной фазы является существование бесщелевой голдстоуновской моды возбуждений в упорядоченной фазе. Это предсказание основано на сохранении осевой симметрии в поле выше поля закрытия щели, что часто не наблюдается для реальных магнетиков из-за низкой симметрии кристалла. Тетрагональная симметрия кристаллов DTN делает их одним из наиболее подходящих объектов для проверки этого предсказания.

Динамика низкоэнергетичных возбуждений в DTN изучалась при помощи спектроскопии магнитного резонанса [7–9]. В недавней работе Солдатова и др. [9] было экспериментально обнаружено, что при небольшом (до 5°) отклонении поля от оси 4 порядка бесщелевая голдстоуновская мода приобретает конечную частоту. Частоты магнитного резонанса в индуцированной полем упорядоченной фазе DTN вычислялись с помощью различных подходов теоретически в работах [8, 10], однако

¹⁾e-mail: glazkov@kapitza.ras.ru

эти описания не давали компактных аналитических выражений для частот магнитного резонанса и не определяли вида их зависимости от параметров обменного взаимодействия и одноионной анизотропии. В данной работе предлагается интерпретация частот магнитного резонанса в индуцированной полем антиферромагнитно-упорядоченной фазе квантового магнетика со спином $S = 1$ DTN, использующая комбинацию получаемой в пределе сильной связи эффективной модели и классической теории антиферромагнитного резонанса, позволяющая проследить характерную зависимость частот магнитного резонанса от параметров микроскопической модели, а также объясняющая количественно наблюдаемые в подкошенной ориентации поля эффекты и их зависимость от магнитного поля.

Спиновый гамильтониан для одной цепочки спинов в DTN может быть записан в виде

$$\mathcal{H}_{\text{chain}} = \sum_i (DS_{z,i}^2 + JS_i S_{i+1} - g\mu_B \mathbf{B} S_i) \quad (1)$$

для DTN $D = 8.9\text{ K}$, $J = 2.2\text{ K}$, самый сильный из междоцепочечных обменных интегралов оказывается примерно в 10 раз меньше (0.18 K), а значение g -фактора для поля, приложенного вдоль тетрагональной оси $g = 2.26$ [7].

Для $D \gg J$ дисперсия спиновых возбуждений может быть найдена в рамках теории возмущений для $\mathbf{B} \parallel Z$ в полях, меньших поля закрытия щели. В работе [11] спектр возбуждений в нулевом поле вычислен до третьего порядка по (J/D) для $S = 1$ (в работе [12] аналогичный результат получен для произвольного спина), учет магнитного поля трудностей не представляет так как S_z остается хорошим квантовым числом. Спектр одночастичных возбуждений в поле, большем поля насыщения, находится точно (для DTN вычисления с учетом междоцепочечных взаимодействий приведены в [7]).

Критические поля могут быть найдены как значения поля, в котором в минимуме спектра на $(ka) = \pi$ энергия возбуждения обращается в нуль [7, 13]:

$$g\mu_B B_{c1} = D - 2J + \frac{J^2}{D} + \frac{J^3}{2D^2}, \quad (2)$$

$$g\mu_B B_{c2} = D + 4J. \quad (3)$$

В пределе $D \gg J$ поля B_{c1} и B_{c2} близки. Рассмотрение спиновой цепочки в интервале $B_{c1} < B < B_{c2}$ при этом может быть сделано в рамках проецирования на два близких одноионных уровня $S_z = 0$ и $S_z = 1$. Такую двухуровневую систему формально можно описать псевдоспином $T = 1/2$, сопоставив

$T_z = -1/2$ с $S_z = 0$ и $T_z = 1/2$ с $S_z = 1$ [13]. Правила преобразования спиновых операторов:

$$S_z = T_z + 1/2, \quad (4)$$

$$S^\pm = \sqrt{2}T^\pm. \quad (5)$$

После такой замены для поля $\mathbf{B} \parallel Z$ гамильтониан (1) преобразуется с линейной по J/D точностью

$$\mathcal{H} = 2J \sum_i \left(T_{x,i} T_{x,i+1} + T_{y,i} T_{y,i+1} + \frac{1}{2} T_{z,i} T_{z,i+1} \right) + (J + D - g\mu_B B) \sum_i T_{z,i} + N \frac{2J + D - g\mu_B B}{2}. \quad (6)$$

Таким образом, задача свелась к однородной цепочке спинов $S = 1/2$ с сильной XY -анизотропией спин-спинового взаимодействия в эффективном магнитном поле $B_{\text{eff}} = B - (J + D)/(g\mu_B)$. Эффективное поле оказывается равным нулю в поле $B_0 = (J + D)/(g\mu_B)$, которое в первом порядке теории возмущений равно полусумме критических полей. Отметим здесь также, что в пределе $D \gg J$ наблюдаемые при $B < B_{c1}$ ЭПР-активные переходы при $k = 0$ будут иметь частоты $hf = (D + 2J + \frac{J^2}{D} - \frac{J^3}{2D} \pm g\mu_B B)$ и в парамагнитной фазе нижняя ветвь в приближении $D \gg J$ будет зануляться в поле $B_0^{(\text{PM})} = (D + 2J + \frac{J^2}{D} - \frac{J^3}{2D})/(g\mu_B)$, близком, но не совпадающем с B_0 . Аналогично, экстраполяция к нулю высокополевой моды ЭПР ($k = 0$) при $B > B_{c2}$, $hf = (g\mu_B B - D)$, занулитесь в поле $B_0^{(\text{HF})} = D/(g\mu_B)$ [7], отличном от B_0 и B_{c2} .

Междоцепочечное обменное взаимодействие после аналогичного преобразования также примет вид взаимодействия с XY -анизотропией. Тогда в поле B_0 мы получим при $T = 0$ эквивалентный исходной задаче трехмерный упорядоченный антиферромагнетик с сильной анизотропией типа “легкая плоскость” в нулевом эффективном поле.

При отклонении значения приложенного поля от B_0 получим эквивалентную задачу об антиферромагнетике типа “легкая плоскость” в поле $B_{\text{eff}} = B - B_0$, приложенном вдоль оси Z . При этом поля B_{c1} и B_{c2} , симметрично расположенные относительно B_0 , будут иметь смысл поля насыщения для эквивалентной модели. Собственные частоты (частоты антиферромагнитного резонанса) для антиферромагнетика типа “легкая плоскость” могут быть вычислены для сильной анизотропии в рамках модели подрешеток [14, 15]: одна собственная частота остается равной нулю, а вторая зависит от поля щелевым образом $f = \sqrt{(\gamma B_{\text{eff}})^2 + \Delta^2}$, где $\gamma = g\mu_B/h$ – гиромагнитное отношение. Первая частота соответствует

ожидаемой голдстоуновской моде, вторая частота — наблюдаемой в работах [8, 9] ветви спектра с щелью 78 ГГц при $T = 0.45$ К.

В рамках модели подрешеток, пренебрегая слабыми межцепочечными взаимодействиями, величина щели Δ может быть связана с XY -анизотропией эффективной модели (6) и величиной параметра порядка [13–15]:

$$\Delta = \gamma\sqrt{2H_A H_E}, \quad (7)$$

где обменное поле $H_E = 4J\mu/(g^2\mu_B^2)$ и поле анизотропии $H_A = J\mu/(g^2\mu_B^2)$, μ — средняя намагниченность подрешетки. Отсюда $\Delta = 2\sqrt{2}(J/h)\langle t_\perp \rangle$, где $\langle t_\perp \rangle$ — средняя проекция псевдоспина на плоскость XY . С учетом подстановки (5) получаем связь с поперечной компонентой реального спина

$$\Delta = \frac{2J}{h}\langle S_\perp \rangle. \quad (8)$$

Таким образом, величина щели Δ для верхней ветви магнитного резонанса в упорядоченной фазе определяется в основном внутрицепочечным обменным интегралом J , в то время как положение минимума этой ветви в основном определяется константой одноионной анизотропии D .

Зависимость щели Δ от температуры была изучена в работе [8]. По этим данным можно восстановить зависимость параметра порядка от температуры в поле 8 Тл (рис. 1). Полученный результат качественно непротиворечив: получаются значения $\langle S_\perp \rangle < 1$.

Рассмотрим теперь случай, когда магнитное поле отклонено от оси Z на небольшой угол Θ к оси X . При небольших углах отклонения поля от оси Z индуцированное полем антиферромагнитно-упорядоченное состояние не исчезает, хотя критические поля немного изменяются [16]. С линейной по Θ точностью после перехода к псевдоспиновым операторам зеемановская часть гамильтониана (6) примет вид

$$\mathcal{H}_Z = -g\mu_B B_{\text{eff}} \sum_i T_{z,i} - \sqrt{2}g\mu_B B\Theta \sum_i T_{x,i}. \quad (9)$$

Таким образом, возникает добавка, определяемая *полным внешним полем*, направленным в “легкой плоскости”. Мы будем считать эту добавку малой: $g\mu_B B\Theta \simeq D\Theta \ll J \ll D$.

Если внешнее поле равно B_0 , то компоненты эффективного поля вдоль оси симметрии нет и получается эквивалентная задача об антиферромагнетике типа “легкая плоскость” в поле, приложенном в плоскости. Собственные частоты такого антиферромагнетика [14, 15] $f_1 = \gamma B$ и $f_2 = \Delta$. Таким образом,

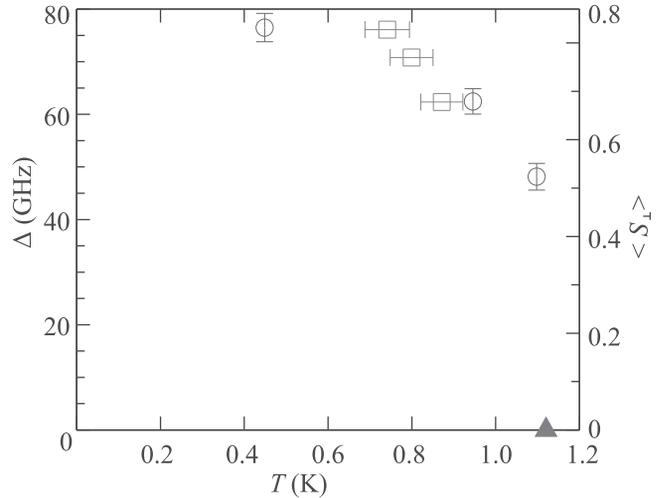


Рис. 1. (Цветной онлайн) Зависимость вычисленного по формуле (8) в поле 8 Тл среднего значения поперечной компоненты спина от температуры. По левой оси отложены значения щели Δ из работы [8] (открытые символы, квадраты соответствуют экспериментам со сканированием температуры на фиксированной частоте, кружки соответствуют экспериментам по изменению частотно-полевого зависимости магнитного резонанса при фиксированной температуре), по правой оси — среднее значение поперечной компоненты спина. Закрашенный треугольник на оси температур — значение температуры перехода в упорядоченное состояние по работе [2]

мы получаем количественный ответ для возникающей в поле $B_0 \approx (B_{c1} + B_{c2})/2$ частоты нижней ветви спектра магнитного резонанса:

$$f_1(\Theta) = \sqrt{2}\gamma B_0 \Theta. \quad (10)$$

Подчеркнем, что в отличие от интерпретации щели в верхней ветви магнитного резонанса, этот результат не зависит от величины индуцированного полем параметра порядка.

При отклонении амплитуды внешнего поля от B_0 эффективное поле окажется наклонено в плоскости XZ : $\mathbf{B}_{\text{eff}} = (\sqrt{2}B\Theta; 0; (B - B_0))$ и можно воспользоваться известным выражением [14]

$$\frac{(\gamma B_{\text{eff},x})^2}{f^2} + \frac{(\gamma B_{\text{eff},z})^2}{f^2 - \Delta^2} = 1, \quad (11)$$

откуда для частот магнитного резонанса

$$f_1^2 = \frac{1}{2} [\Delta^2 + 2(\gamma B\Theta)^2 + \gamma^2(B - B_0)^2 \pm \sqrt{(\Delta^2 + 2(\gamma B\Theta)^2 + \gamma^2(B - B_0)^2)^2 - 8\Delta^2(\gamma B\Theta)^2}]. \quad (12)$$

Предложенная модель фактически использует для описания упорядочения классическое приближение среднего поля для двухподрешеточного антиферромагнетика. В этом приближении намагниченность антиферромагнетика должна меняться линейно по полю вплоть до поля насыщения. Из-за сильной одномерности DTN при приближении к критическим полям намагниченность меняется нелинейно [4, 6, 7], причем отклонения от линейной зависимости возникают несимметрично при увеличении и уменьшении поля. Такая асимметрия свойств реального магнетика по сравнению с предсказаниями модели связана с ограниченной точностью использованного линейного по J/D приближения. Таким образом, предложенная модель применима только в ближайшей окрестности поля B_0 , которая может быть оценена как область полей, в которой зависимость намагниченности от поля [7] линейна: это интервал полей от 4 до 10 Тл. Расширение области применимости модели потребует одновременно и учета следующих порядков по J/D при переходе к псевдоспиновому представлению, и учета одномерности спиновой подсистемы DTN. Однако, можно предсказать, что частота нижней ветви будет обращаться в нуль в критических полях B_{c1} и B_{c2} , являющихся полями насыщения эквивалентной модели.

Сравнение модельных кривых с экспериментальными данными из работы [9] показано на рис. 2. Модельные кривые построены без дополнительных подгоночных параметров, использовались значения параметров $D = 8.9$ К, $J = 2.2$ К, $g = 2.26$ ($\gamma = 31.6$ ГГц/Тл) [7], для которых $B_0 = 7.3$ Тл (полусумма экспериментально измеренных значений B_{c1} и B_{c2} равна 7.4 Тл) и экспериментально измеренное значение $\Delta = 78$ ГГц [8, 9]. Вычисление модельных кривых проводилось для углов отклонения поля 0° , 1° , 3° , 6° , указанных для экспериментальных данных в работе [9], этот угол устанавливается в эксперименте с точностью $\simeq 1..2^\circ$. Видно, что наблюдается хорошее согласие между модельными и экспериментальными данными.

Таким образом, получена наглядная модель, описывающая собственные частоты антиферромагнитного резонанса в квазиодномерном магнетике с сильной анизотропией типа “легкая плоскость” $\text{NiCl}_2 \cdot 4\text{SC}(\text{NH}_2)_2$, в том числе и для случая слегка подкошенного относительно оси симметрии магнитного поля.

Работа выполнена при поддержке гранта Российского научного Фонда #17-12-01505 и Программы Президиума Российской академии наук “Актуальные проблемы физики низких температур”.

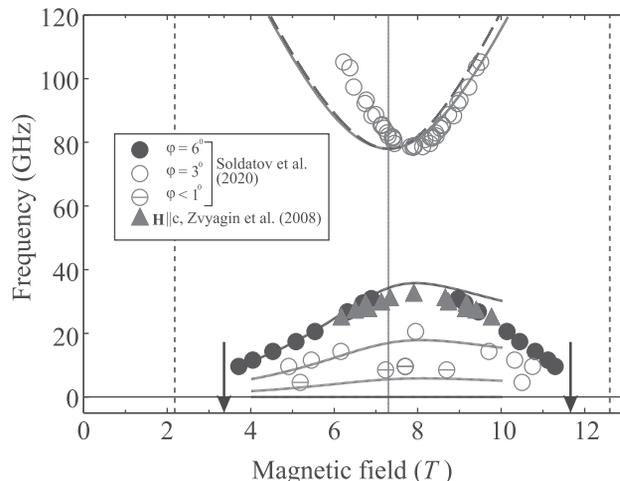


Рис. 2. (Цветной онлайн) Сравнение модельного расчета частот антиферромагнитного резонанса с экспериментальными результатами работ [9] (кружки) и [8] (треугольники). Вертикальная сплошная линия отмечает поле B_0 , вертикальные пунктирные линии отмечают экспериментально измеренные значения критических полей B_{c1} и B_{c2} , стрелки показывают расчетные значения критических полей по уравнениям (2), (3). Кривые – модельный расчет для указанных в тексте параметров. Для нижней ветви магнитного резонанса кривые снизу вверх соответствуют углам отклонения поля 0° , 1° , 3° и 6° , соответственно. Для верхней ветви показан расчет для угла отклонения поля 0° (сплошная кривая) и 6° (пунктирная кривая)

Автор благодарит А. И. Смирнова и Т. А. Солдатова (ИФП РАН) за многочисленные плодотворные обсуждения.

1. A. Lopez-Castro and M. R. Truter, J. Chem. Soc. 1309 (1963).
2. V. S. Zapf, D. Zocco, B. R. Hansen, M. Jaime, N. Harrison, C. D. Batista, M. Kenzelmann, C. Niedermayer, A. Lacerda, and A. Paduan-Filho, Phys. Rev. Lett. **96**, 077204 (2006).
3. A. Paduan-Filho, R. D. Chirico, K. O. Joung, and R. L. Carlin, J. Chem. Phys. **74**, 4103 (1981).
4. A. Paduan-Filho, X. Gratens, and N. F. Oliveira, Jr., Phys. Rev. B **69**, 020405(R) (2004).
5. T. Giamarchi, C. Ruegg, and O. Tchernyshyov, Nat. Phys. **4**, 198 (2008).
6. V. Zapf, M. Jaime, and C. D. Batista, Rev. Mod. Phys. **86**, 563 (2014).
7. S. A. Zvyagin, J. Wosnitza, C. D. Batista, M. Tsukamoto, N. Kawashima, J. Krzystek, V. S. Zapf, M. Jaime, N. F. Oliveira, Jr., and A. Paduan-Filho, Phys. Rev. Lett. **98**, 047205 (2007).
8. S. A. Zvyagin, J. Wosnitza, A. K. Kolezhuk, V. S. Zapf, M. Jaime, A. Paduan-Filho, V. N. Glazkov, S. S. Sosin, and A. I. Smirnov, Phys. Rev. B **77**, 092413 (2008).

9. T. A. Soldatov, A. I. Smirnov, K. Yu. Povarov, A. Paduan-Filho, and A. Zheludev, *Phys. Rev. B* **101**, 104410 (2020).
10. A. S. Sherbakov and O. I. Utesov, *J. Magn. Magn. Mater.* **518**, 167390 (2021); arXiv:2004.02170 (2020).
11. N. Papanicolaou and P. Spathis, *J. Phys.: Condens. Matter* **2**, 6575 (1990).
12. A. V. Sizanov and A. V. Syromyatnikov, *Phys. Rev. B* **84**, 054445 (2011).
13. K. M. Diederix, J. P. Groen, T. O. Klaassen, N. J. Poulis, and R. L. Carlin, *Physica B+C* **97**, 113 (1979).
14. T. Nagamiya, K. Yosida, and R. Kubo, *Adv. Phys.* **4**, 1 (1955).
15. A. G. Gurevich and G. A. Melkov, *Magnetization Oscillations and Waves*, CRC Press, Boca Raton, N.Y., London, Tokyo (1996).
16. V. M. Kalita and V. M. Loktev, *JETP Lett.* **93**, 534 (2011) [*Письма в ЖЭТФ* **93**, 592 (2011)].

Фазовое расслоение в состоянии с волной спиновой плотности в подкрученном двухслойном графене при магическом угле подкрутки

А. О. Сбойчаков⁺¹⁾, А. В. Рожков^{+*}, К. И. Кугель⁺, А. Л. Рахманов⁺

⁺Институт теоретической и прикладной электродинамики РАН, 125412 Москва, Россия

^{*}Сколковский институт науки и технологии, Сколковский центр инноваций, 143026 Москва, Россия

Поступила в редакцию 21 октября 2020 г.

После переработки 21 октября 2020 г.

Принята к публикации 22 октября 2020 г.

В работе теоретически исследуется подкрученный двухслойный графен при так называемом магическом угле подкрутки $\theta \sim 1^\circ$. Без учета взаимодействия рассматриваемая система характеризуется наличием четырех почти вырожденных плоских зон вблизи уровня Ферми. Электрон-электронное взаимодействие снимает данное вырождение и стабилизирует некий параметр порядка в системе. Мы предполагаем, что возникающий параметр порядка является волной спиновой плотности. В работе исследуется эволюция состояния с волной спиновой плотности при допировании. Мы показываем, что в области концентраций, в которой существует рассматриваемый параметр порядка, однородное состояние системы может быть неустойчиво по отношению к фазовому расслоению. А именно, зависимость химпотенциала от допирования немонотонна, что согласуется с недавними экспериментами. Фазы в неоднородном состоянии характеризуются четным числом ($\nu = 0, \pm 2, \pm 4$) электронов, приходящихся на одну сверхячейку. Это позволяет объяснить некоторые особенности поведения проводимости системы с допированием.

DOI: 10.31857/S1234567820220115

Введение. Явление электронного фазового расслоения присуще множеству соединений. К такому прежде всего относятся системы с сильными электронными корреляциями, в которых потенциальная энергия взаимодействия превосходит кинетическую энергию электронов [1]. Примером таких систем можно назвать манганиты [2], кобальтиты [3], купраты [4]. Во всех вышеперечисленных соединениях электронное фазовое расслоение наблюдается экспериментально. Недавно нами было показано, что электронное фазовое расслоение может реализовываться в системах с нестингом поверхности Ферми [5, 6] – свойством, при котором некоторые части поверхности Ферми совпадают друг с другом при параллельном переносе одной из них на вектор нестинга \mathbf{Q}_0 . Экспериментальным подтверждением данного тезиса можно назвать наблюдение неоднородных состояний в пниктидах железа [7] и органических металлах [8] – соединениях, обладающих нестингом поверхности Ферми. Еще одним примером системы с нестингом поверхности Ферми является двухслойный AA графен [9] – двумерный материал, состоящий из двух идентичных слоев графена. В рабо-

тах [10, 11] нами было показано, что основным состоянием двухслойного AA графена должна быть волна спиновой плотности (ВСП). Допирование материала может приводить к расслоению на фазы [11]: измеримую, характеризующуюся вектором нестинга $\mathbf{Q}_0 = 0$, и несоизмеримую ($\mathbf{Q}_0 \neq 0$) волны спиновой плотности.

Другим примером материала, состоящего из двух слоев графена, является подкрученный двухслойный графен [9]. В последнее время данный материал привлекает широкое внимание исследователей в связи с открытием в нем моттовских диэлектрических состояний [12, 13] и сверхпроводимости [13, 14]. В подкрученном двухслойном графене один слой графена повернут относительно другого на некоторый угол подкрутки θ . Это приводит к возникновению муарового узора и сверхструктуры в системе, при этом число атомов в сверхячейке N может быть достаточно велико ($N \sim 10^4$ при $\theta \sim 1^\circ$). Свойства электронного спектра подкрученного двухслойного графена вблизи уровня Ферми существенно зависят от величины θ . Так, при так называемом магическом угле подкрутки $\theta \sim 1^\circ$, электронный спектр вблизи уровня Ферми состоит из четырех почти вырожденных плоских зон [9]. Система с плоскими зонами чрезвычайно

¹⁾e-mail: sboycha@mail.ru

восприимчива к взаимодействию [15, 16]. Последнее делает ферми-жидкость подкрученного двухслойного графена неустойчивой и приводит к возникновению некоторого параметра порядка в системе. Следуя работе [17], мы будем полагать, что состоянием с параметром порядка является волна спиновой плотности. Это предположение является обоснованным в связи с тем, что электроны вблизи уровня Ферми в подкрученном двухслойном графене при малых углах подкрутки локализованы в областях с АА упаковкой [9]. В данной работе мы сосредоточимся на исследовании устойчивости однородного состояния в подкрученном двухслойном графене при допировании. Мы покажем, что электронная сжимаемость системы отрицательна в некоторых интервалах допирования, что указывает на неустойчивость однородного состояния. Такое поведение системы с допированием согласуется с недавними экспериментами [18, 19]. При этом фазы в неоднородном состоянии характеризуются четным числом ($\nu = 0, \pm 2, \pm 4$) электронов, приходящихся на одну сверхячейку. Это позволяет объяснить тот факт, что минимумы проводимости, которые могли бы возникнуть при уровнях допирования, соответствующих нечетному числу ($\nu = \pm 1, \pm 3$) электронов в расчете на одну сверхячейку, отсутствуют в одних образцах [12] (возникает фазовое расслоение) и наблюдаются в других [13] (фазовое расслоение подавлено дальнедействующим кулоновским взаимодействием).

Геометрия подкрученного графена. Для удобства читателей мы кратко опишем основные геометрические особенности рассматриваемой системы (более подробное изложение можно найти в обзоре [9]). Монослой графена имеет гексагональную кристаллическую структуру, состоящую из двух треугольных подрешеток A и B . Координаты атомов в слое 1 равны $\mathbf{r}_n^{1A} = \mathbf{r}_n^1 \equiv n\mathbf{a}_1 + m\mathbf{a}_2$ и $\mathbf{r}_n^{1B} = \mathbf{r}_n^1 + \boldsymbol{\delta}$, где $\mathbf{n} = (n, m)$ (n и m – натуральные числа), $\mathbf{a}_{1,2} = a(\sqrt{3}, \mp 1)/2$ – векторы решетки ($a = 2.46 \text{ \AA}$), а $\boldsymbol{\delta} = a(1/\sqrt{3}, 0)$. Атомы в слое 2 расположены в точках $\mathbf{r}_n^{2B} = \mathbf{r}_n^2 \equiv d\mathbf{e}_z + n\mathbf{a}'_1 + m\mathbf{a}'_2$ и $\mathbf{r}_n^{2A} = \mathbf{r}_n^2 - \boldsymbol{\delta}'$, где векторы $\mathbf{a}'_{1,2}$ и $\boldsymbol{\delta}'$ получаются из векторов $\mathbf{a}_{1,2}$ и $\boldsymbol{\delta}$ поворотом на угол θ . Единичный вектор вдоль оси z есть \mathbf{e}_z . Расстояние между слоями $d = 3.35 \text{ \AA}$. Предельный случай $\theta = 0$ соответствует АВ упаковке (фаза Бернала). Сверхструктура в подкрученном двухслойном графене возникает при углах $\cos \theta = (3m_0^2 + 3m_0r + r^2/2)/(3m_0^2 + 3m_0r + r^2)$, где m_0 и r – положительные взаимно простые числа. Число элементарных ячеек каждого слоя графена в сверхячейке равно $N_{sc} = (3m_0^2 + 3m_0r + r^2)/g$, где $g = 1$, если $r \neq 3n$ или $g = 3$ в против-

ном случае. Векторы обратной решетки слоя 1 (слоя 2) обозначим как $\mathbf{b}_{1,2}$ ($\mathbf{b}'_{1,2}$). Для слоя 1 имеем $\mathbf{b}_{1,2} = 2\pi(1/\sqrt{3}, \mp 1)/a$, тогда как $\mathbf{b}'_{1,2}$ получаются из векторов $\mathbf{b}_{1,2}$ поворотом на угол θ . Пусть $\mathcal{G}_{1,2}$ – векторы обратной сверхрешетки. Можно показать, что справедливы следующие равенства: $\mathbf{b}'_1 = \mathbf{b}_1 + r(\mathcal{G}_1 + \mathcal{G}_2)$ и $\mathbf{b}'_2 = \mathbf{b}_2 - r\mathcal{G}_1$, если $r \neq 3n$ или $\mathbf{b}'_1 = \mathbf{b}_1 + r(\mathcal{G}_1 + 2\mathcal{G}_2)/3$ и $\mathbf{b}'_2 = \mathbf{b}_2 - r(2\mathcal{G}_1 + \mathcal{G}_2)/3$ в противном случае. Зона Бриллюэна сверхрешетки имеет гексагональную форму. Два неэквивалентных угла зоны Бриллюэна (точки Дирака сверхрешетки), \mathbf{K}_1 и \mathbf{K}_2 , могут быть выражены через вектора $\mathcal{G}_{1,2}$ равенствами $\mathbf{K}_1 = (\mathcal{G}_1 + 2\mathcal{G}_2)/3$ и $\mathbf{K}_2 = (2\mathcal{G}_1 + \mathcal{G}_2)/3$. Определим также точку \mathbf{M} , как $\mathbf{M} = (\mathcal{G}_1 + \mathcal{G}_2)/2$.

Модельный гамильтониан. Мы используем следующий модельный гамильтониан подкрученного двухслойного графена:

$$H = \sum_{\substack{nmij \\ sr\sigma}} t(\mathbf{r}_n^{is}; \mathbf{r}_m^{jr}) d_{n\sigma}^\dagger d_{mjr\sigma} + \frac{U}{2} \sum_{n\sigma} n_{n\sigma} n_{n\sigma} + \frac{1}{2} \sum'_{\substack{nmij \\ sr\sigma\sigma'}} V(\mathbf{r}_n^{is} - \mathbf{r}_m^{jr}) n_{n\sigma} n_{mjr\sigma'}. \quad (1)$$

В этом выражении $d_{n\sigma}^\dagger$ и $d_{n\sigma}$ – операторы рождения и уничтожения электрона с проекцией спина σ в ячейке \mathbf{n} слоя i ($= 1, 2$) и подрешетки s ($= A, B$), а $\bar{\sigma} = -\sigma$. Оператор $n_{n\sigma} = d_{n\sigma}^\dagger d_{n\sigma}$. Первое слагаемое в формуле (1) есть одночастичный гамильтониан системы в приближении сильной связи, где $t(\mathbf{r}_n^{is}; \mathbf{r}_m^{jr})$ – амплитуда перескока электрона с узла \mathbf{r}_m^{jr} на узел \mathbf{r}_n^{is} . Внутри одного слоя мы учитываем только перескоки между ближайшими соседями с амплитудой $t = -2.57 \text{ эВ}$. Функция $t(\mathbf{r}_n^{1s}; \mathbf{r}_m^{2r})$, описывающая перескоки между слоями, моделируется так, как это описано в работе [17] (отметим, впрочем, что выбор других параметризаций [20] качественно не влияет на полученный результат). Максимальная величина межслоевого перескока выбрана равной $t_0 = 0.4 \text{ эВ}$.

Второе слагаемое в уравнении (1) описывает одноцентровое (халлардовское) взаимодействие электронов с противоположными спинами, тогда как третье слагаемое описывает кулоновское взаимодействие электронов на разных узлах решетки (штрих у суммы означает, что элементы с $\mathbf{r}_n^{is} = \mathbf{r}_m^{jr}$ должны быть отброшены).

Одноэлектронный спектр при магическом угле подкрутки. В одноэлектронном приближении энергетический спектр подкрученного графена определяется путем численной диагонализации первого слагаемого в уравнении (1). Для любой сверхструк-

туры (m_0, r) электронный спектр двухслойки состоит из $4N_{sc}$ зон $E_{\mathbf{k}}^{(S)}$, где квазиимпульс \mathbf{k} лежит в зоне Бриллюэна сверхрешетки, а $1 \leq S \leq 4N_{sc}$. При заданном \mathbf{k} энергии $E_{\mathbf{k}}^{(S)}$ располагаются в порядке возрастания. Наибольший интерес представляют четыре зоны, лежащие в середине спектра, поскольку именно они находятся вблизи уровня Ферми в недопированном образце (т.е. при половинном заполнении).

Характер низкоэнергетического спектра существенно зависит от угла подкрутки θ . Когда угол подкрутки не мал, низкоэнергетический спектр состоит из двух дважды вырожденных дираковских конусов, расположенных вблизи точек Дирака сверхрешетки \mathbf{K}_1 и \mathbf{K}_2 . Эти конусы Дирака пересекаются при энергиях выше и ниже энергии вершины конуса, что приводит к возникновению низкоэнергетических особенностей ван Хова (эти особенности сохраняются и при малых углах). Межслоевая гибридизация перенормирует скорость Ферми дираковских конусов, делая ее меньше скорости Ферми для однослойного графена [9, 21]. При не слишком малых θ перенормированная скорость Ферми уменьшается с уменьшением θ . Хотя эта перенормировка может быть существенной, недопированный образец остается полуметаллом. Однако, при так называемом магическом угле подкрутки $\theta = \theta_c$ система обретает Ферми поверхность даже при половинном заполнении. В этом случае низкоэнергетический спектр состоит из четырех довольно плоских зон, которые отделены щелями от низко- и высокоэнергетических зон. Ширина плоских зон W имеет минимум при $\theta = \theta_c$.

Величина магического угла θ_c зависит от вида параметризации межслоевых перескоков. Для выбранной параметризации имеем $\theta_c \cong 1.08^\circ$ [сверхструктура $(m_0, r) = (30, 1)$]. Такое значение θ_c соответствует эксперименту [12, 13]. При этом ширина плоских зон равна $W = 1.9$ мэВ. Энергетический спектр, рассчитанный для данной сверхструктуры, показан на рис. 1.

Структура параметра порядка. Как уже отмечалось, система, имеющая плоские зоны на уровне Ферми, весьма восприимчива к взаимодействиям [15, 16]. Взаимодействия описываются вторым и третьим слагаемыми в гамильтониане (1). Их учет приводит к спонтанному нарушению симметрии и порождает некоторый параметр порядка. Здесь мы предполагаем, что этот параметр порядка представляет собой волну спиновой плотности. Такой выбор не является произвольным. Как было показано во многих работах (см., например, работы [9, 21, 22]), при малых углах подкрутки электроны на уровне Ферми зани-

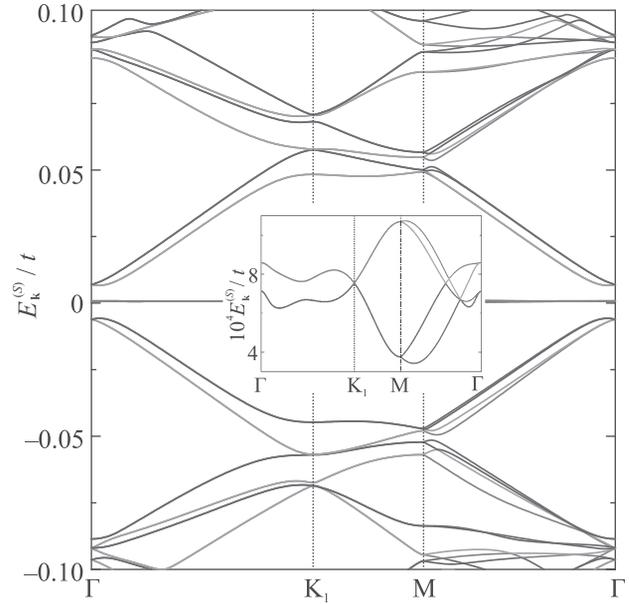


Рис. 1. (Цветной онлайн) Энергетический спектр подкрученного двухслойного графена при магическом угле подкрутки $\theta_c \cong 1.08^\circ$ [сверхструктура $(m_0, r) = (30, 1)$]. Вблизи нуля энергии имеются четыре плоские зоны, отделенные энергетическими щелями от более низких и более высоких зон. Вставка показывает дисперсию плоских зон в увеличенном масштабе

мают области сверхячейки с АА упаковкой. В то же время, как было показано нами в работах [10, 11], основное состояние двухслойного АА графена должно быть антиферромагнитным. По этой причине мы считаем, что ВСП должна быть хорошим кандидатом на роль основного состояния в подкрученном двухслойном графене.

Рассматриваемый параметр порядка является многокомпонентным. Во-первых, он содержит члены, пропорциональные локальным спинам:

$$\Delta_{nis} = U \langle d_{nis\uparrow}^\dagger d_{nis\downarrow} \rangle. \quad (2)$$

Эти компоненты контролируются одноцентровым кулоновским отталкиванием. При расчетах мы полагаем $U = 2t$. Это значение несколько меньше критического значения для перехода однослойного графена в антиферромагнитное состояние в приближении среднего поля [23], $U_c = 2.23t$. Таким образом, мы полагаем, что выбранное хаббардовское взаимодействие является довольно сильным, но не настолько, чтобы открыть щель в однослойном графене [9].

Мы также включаем параметр порядка, описывающий взаимодействие электронов на соседних узлах внутри слоя. Каждый атом графена в одной подрешетке имеет трех ближайших соседей, принадлежащих другой подрешетке. По этой причине мы

рассматриваем три типа внутрислойных параметров порядка между ближайшими соседями: параметры $A_{\mathbf{n}\ell\sigma}^{(\ell)}$ ($\ell = 1, 2, 3$) соответствуют трем различным связям, соединяющим ближайшие узлы внутри слоя. Эти параметры порядка определяются следующим образом:

$$A_{\mathbf{n}\ell\sigma}^{(\ell)} = V_{\text{nn}} \langle d_{\mathbf{n}+\mathbf{n}_\ell i A \sigma}^\dagger d_{\mathbf{n} i B \bar{\sigma}} \rangle, \quad (3)$$

где $\mathbf{n}_1 = (0, 0)$, $\mathbf{n}_2 = (1, 0)$, $\mathbf{n}_3 = (0, 1)$, а $V_{\text{nn}} = V(|\delta|)$ – кулоновское взаимодействие электронов, находящихся на соседних узлах внутри слоя. В соответствии с оценкой, сделанной в работе [24], мы полагаем $V_{\text{nn}}/U = 0.59$.

Наконец, мы учитываем также параметр порядка, описывающий взаимодействие электронов между слоями. Он определяется как:

$$B_{\mathbf{m};\mathbf{n}\sigma}^{rs} = V(\mathbf{r}_{\mathbf{m}}^{1r} - \mathbf{r}_{\mathbf{n}}^{2s}) \langle d_{\mathbf{m}1r\sigma}^\dagger d_{\mathbf{n}2s\bar{\sigma}} \rangle. \quad (4)$$

Мы учитываем только такие $B_{\mathbf{m};\mathbf{n}\sigma}^{rs}$, для которых узлы $\mathbf{r}_{\mathbf{m}}^{1s}$ и $\mathbf{r}_{\mathbf{n}}^{2r}$ располагаются достаточно близко друг к другу. Если амплитуда перескока между узлами $\mathbf{r}_{\mathbf{m}}^{1s}$ и $\mathbf{r}_{\mathbf{n}}^{2r}$ пренебрежимо мала, то параметр порядка $B_{\mathbf{m};\mathbf{n}\sigma}^{rs}$ полагается равным нулю. Предполагая, что на малых расстояниях экранировка незначительна, мы моделируем функцию $V(\mathbf{r})$ в уравнении (4) как $V(\mathbf{r}) \propto 1/|\mathbf{r}|$ с $V(d) = V_{\text{nn}}|\delta|/d = 0.25U$.

Мы полагаем, что все параметры порядка обладают периодичностью сверхрешетки. Мы численно решаем систему уравнений на $\Delta_{\mathbf{n}is}$, $A_{\mathbf{n}\ell\sigma}^{(\ell)}$ и $B_{\mathbf{m};\mathbf{n}\sigma}^{rs}$ в приближении среднего поля при различных уровнях допирования n в интервале от -4 до $+4$ лишних электронов на сверхячейку. Детали итерационной схемы можно найти в работе [20].

Результаты. Спектральные свойства. Проводимость. Расчет показывает, что все три типа параметров порядка достигают своих максимальных значений в недопированном образце (один электрон на узел). При допировании параметры порядка $\Delta_{\mathbf{n}is}$, $A_{\mathbf{n}\ell\sigma}^{(\ell)}$ и $B_{\mathbf{m};\mathbf{n}\sigma}^{rs}$ монотонно уменьшаются вне зависимости от типа допирования (дырочного или электронного) и обращаются в нуль при допировании $n/n_s = \pm 4$, где концентрация n_s соответствует одному электрону на сверхячейку. Значения параметров порядка неоднородны в пространстве. Наибольшие значения $\Delta_{\mathbf{n}is}$, $A_{\mathbf{n}\ell\sigma}^{(\ell)}$ и $B_{\mathbf{m};\mathbf{n}\sigma}^{rs}$ принимают в области сверхячейки, соответствующей АА упаковке. Это хорошо согласуется с тем фактом, что волновые функции электронов вблизи уровня Ферми также локализованы в АА области сверхячейки. Максимальные значения параметров порядка при половинном заполнении равны $\Delta_{\mathbf{n}is} = 27$ мэВ, $A_{\mathbf{n}\ell\sigma}^{(\ell)} = 3.5$ мэВ и $B_{\mathbf{m};\mathbf{n}\sigma}^{rs} = 0.2$ мэВ.

После того, как параметры порядка найдены, нетрудно рассчитать энергетический спектр. Волна спиновой плотности снимает вырождение электронных зон по спину. С учетом спина в одноэлектронном приближении мы имеем 8 почти вырожденных плоских зон вблизи уровня Ферми. Параметр порядка снимает (частично) данное вырождение, и он делает это по-разному в зависимости от уровня допирования. При половинном заполнении, $\nu \equiv n/n_s = 0$, 8 зон разделяются на два квартета, уровень Ферми находится между квартетами. При $\nu = \pm 2$ каждый квартет разделяется на два дублета, уровень Ферми лежит между двумя верхними (нижними) дублетами при электронном (дырочном) допировании. Когда мы имеем один электрон или дырку на сверхячейку, $\nu = \pm 1$, каждый квартет расщепляется на синглет и триплет, а уровень Ферми находится между синглетом и триплетом. В случае $\nu = \pm 3$ оказывается, что квартет расщепляется на два синглета и дублет, а уровень Ферми лежит между двумя синглетами, верхними в случае электронного или нижними в случае дырочного допирования. Нетрудно понять, что указанные конфигурации зон действительно должны понижать полную энергию системы по сравнению с невырожденным (нет взаимодействия) случаем. Следует отметить, что указанные выше расщепления зон в действительности наблюдаются нами не во всей зоне Бриллюэна. Вблизи Γ точки ситуация оказывается более сложной (подробности можно найти в работе [20]), однако это не принципиально для настоящего изложения.

Зная спектр $E_{\mathbf{k}}^{(S)}$, нетрудно рассчитать плотность состояний на уровне Ферми при разных уровнях допирования. Мы сделали это при конечной (но малой) температуре T , воспользовавшись стандартной формулой:

$$\rho(\varepsilon_F) = \sum_S \int \frac{d^2\mathbf{k}}{v_{BZ}} \frac{1}{4T \cosh \left[(\varepsilon_F - E_{\mathbf{k}}^{(S)})/2T \right]^2}, \quad (5)$$

где v_{BZ} – площадь зоны Бриллюэна однослойного графена. Результат показан на рис. 2а. На том же рисунке, для сравнения, показана плотность состояний на уровне Ферми, рассчитанная для невзаимодействующей системы. Без учета взаимодействия плотность состояний имеет два максимума, связанных с упоминавшимися выше особенностями ван Хофа, а также минимумы при $\nu = 0, \pm 4$. Взаимодействие существенно образом модифицирует зависимость ρ от n . Теперь плотность состояний имеет минимумы при всех целочисленных значениях ν . Такое поведение естественно с учетом расщепления групп зон при

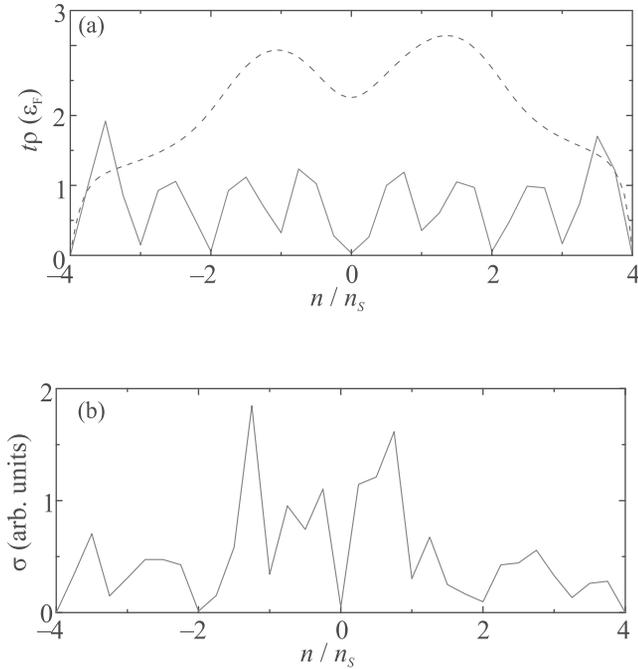


Рис. 2. (Цветной онлайн) (а) – Плотность состояний на уровне Ферми как функция допирования. Сплошная (красная) кривая соответствует взаимодействующей системе, тогда как пунктирная (синяя) кривая построена без учета взаимодействия. (b) – Зависимость проводимости системы от допирования. Расчет сделан при температуре $T/t = 1.5 \cdot 10^{-5}$

различных уровнях допирования, которое было описано выше. Расчет проводимости в τ -приближении, сделанный в работе [17], показал, что проводимость σ как функция допирования n имеет схожее поведение (мы приводим результат этого расчета на рис. 2b). Такой ход зависимости $\sigma(n)$ качественно согласуется с экспериментально наблюдаемым [13]. В то же время эксперименты, описанные в работе [12] показали, что проводимость имеет минимумы лишь при $\nu = 0, \pm 2, \pm 4$ (отметим, впрочем, что для некоторых образцов авторы работы [12] наблюдали также минимумы проводимости при $\nu = \pm 3$, см. дополнительные материалы к работе [12]). Таким образом, мы видим, что последовательность минимумов проводимости системы зависит от образца. В настоящей работе мы объясняем такое поведение тенденцией к фазовому расслоению, которая, как мы покажем, характерна для взаимодействующей системы.

Результаты. Фазовое расслоение. Для исследования устойчивости однородного состояния системы проанализируем зависимость от допирования ее химического потенциала. Расчет, выполненный при малой температуре $T/t = 1.5 \cdot 10^{-5}$, показан на рис. 3.

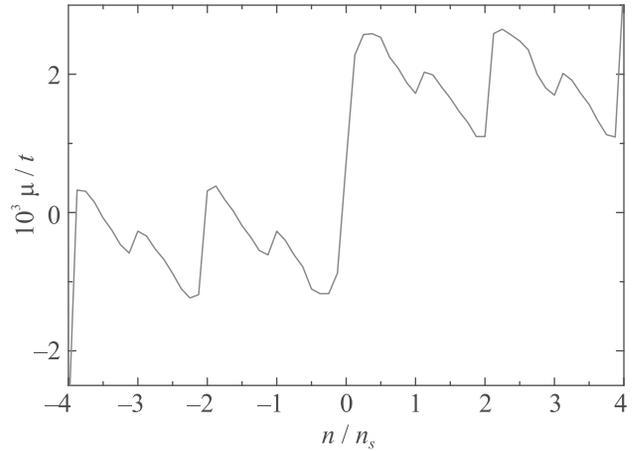


Рис. 3. (Цветной онлайн) Зависимость химпотенциала от допирования. Области с $\partial\mu(n)/\partial n < 0$ сигнализируют о неустойчивости однородного состояния. Расчет выполнен при температуре $T/t = 1.5 \cdot 10^{-5}$

Мы видим, что вблизи целочисленных значений допирования химпотенциал является растущей функцией n . Однако при промежуточных допированиях имеются области, в которых химпотенциал убывает, $\partial\mu(n)/\partial n < 0$, что сигнализирует о неустойчивости однородного состояния по отношению к электронному фазовому расслоению, поскольку сжимаемость электронной системы становится отрицательной. Схожее поведение химпотенциала с допированием недавно наблюдалось в экспериментах [18, 19]. Для того, чтобы понять, на какие именно фазы расслаивается система и в каких областях реализуется фазовое расслоение надо проанализировать свободную энергию системы. Если зависимость $\mu(n)$ известна, то свободная энергия однородного состояния в расчете на одну сверхячейку может быть вычислена по формуле:

$$f(n) = \frac{1}{n_s} \int_{-4n_s}^n \mu(n') dn' - f_0, \quad (6)$$

где константа f_0 выбрана нами так, чтобы выполнялось равенство $f(0) = 0$.

Кривая зависимости $f(n)$ представлена на рис. 4. При каждой концентрации n необходимо сравнить свободную энергию $f(n)$ с энергией неоднородного состояния $f_{PS}(n)$. Последнюю можно получить следующим образом. В неоднородном состоянии система с полной концентрацией электронов n расслаивается на фазу с концентрацией электронов $n_1 (< n)$ и объемной долей p и фазу с концентрацией электронов $n_2 (> n)$ и объемной долей $1 - p$. Величина $p = (n - n_1)/(n_2 - n_1)$, а свободная энергия неод-

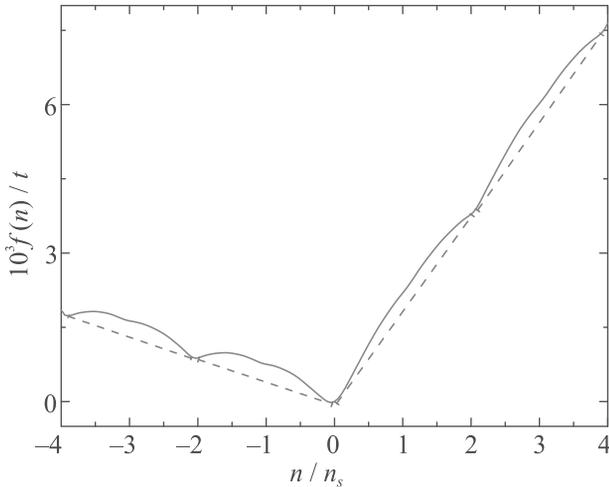


Рис. 4. (Цветной онлайн) Зависимость свободной энергии системы (в расчете на одну сверхячейку) от допирования. Сплошная (красная) кривая соответствует свободной энергии однородного состояния. Энергии неоднородных состояний, полученные построением Максвелла, показаны пунктирными (зелеными) прямыми линиями. Расчет выполнен при температуре $T/t = 1.5 \cdot 10^{-5}$

нородного состояния линейно зависит от n и равна $f_{PS}(n) = pf(n_1) + (1-p)f(n_2)$. Термодинамически равновесные концентрации электронов n_1 и n_2 определяются с помощью построения Максвелла [25]. Анализ зависимости $f(n)$ показывает, что имеются четыре области концентраций $n_1 < n < n_2$, в которых реализуется фазовое расслоение. Это области $(n_1 \approx -4n_s, n_2 \approx -2n_s)$, $(n_1 \approx -2n_s, n_2 \approx 0)$, $(n_1 \approx 0, n_2 \approx 2n_s)$ и $(n_1 \approx 2n_s, n_2 \approx 4n_s)$.

Таким образом, мы видим, что в описанной выше картине однородные фазы с концентрациями вблизи $\nu = \pm 1$ и $\nu = \pm 3$ не реализуются. Отметим также, что фазы в неоднородных состояниях являются (почти) диэлектрическими, и такой простой подход не позволяет объяснить поведение проводимости системы с допированием, наблюдаемое в эксперименте. Следует, однако, иметь в виду, что поскольку фазы в неоднородном состоянии обладают различной концентрацией электронов, то необходимо учитывать дальнедействующее кулоновское отталкивание электронов в неоднородном состоянии, возникающее из-за нарушения локальной электронейтральности. Этот фактор не учитывался при анализе, описанном выше. Как известно, дальнедействующее кулоновское отталкивание сужает область фазового расслоения, и может делать его не выгодным ни при каких концентрациях носителей [26, 27]. В этом случае система всегда однородна, а минимумы

проводимости и плотности состояний на поверхности Ферми существуют при всех целочисленных ν , что наблюдается в эксперименте в работе [13]. Величина дальнедействующего кулоновского отталкивания может меняться от образца к образцу, поскольку она зависит от подложки, на которой находится образец, а также и от качества образца. Когда дальнедействующее кулоновское отталкивание не слишком велико, однородное состояние является более выгодным вблизи четных значений ν , однако фазовое расслоение по-прежнему “скрывает” области вблизи $\nu = \pm 1$ и $\nu = \pm 3$. В этом случае мы должны видеть минимумы проводимости лишь при $\nu = 0, \pm 2, \pm 4$, что соответствует эксперименту [12]. Наконец, дальнедействующее кулоновское отталкивание может полностью запрещать фазовое расслоение лишь для некоторых из четырех интервалов $n_1 < n < n_2$. Тогда в зависимости проводимости от допирования могут появляться дополнительные минимумы при некоторых нечетных ν . Такие минимумы действительно наблюдались для ряда образцов в работе [12].

Еще одним фактором, влияющим на изменчивость поведения проводимости для различных образцов, является угол подкрутки. Действительно, отклонение угла подкрутки образца θ от магического значения θ_c (в любую сторону) увеличивает ширину плоских зон W . Увеличение W уменьшает величину ВСП параметра порядка. Поэтому связанные с ВСП эффекты, такие как отрицательная кривизна свободной энергии, становятся менее выраженными. Это, в свою очередь, увеличивает роль дальнедействующего кулоновского отталкивания.

Закключение. Таким образом, в данной работе мы исследовали свойства состояния с волной спиновой плотности в подкрученном двухслойном графене с магическим углом подкрутки. Исследуя поведение химического потенциала и свободной энергии с допированием, мы продемонстрировали, что однородное состояние системы может быть неустойчиво по отношению к фазовому расслоению на фазы с разными концентрациями носителей. Рассчитанная зависимость химического потенциала от уровня допирования имеет вид, схожий с наблюдаемым в экспериментах. Существуют четыре области допирования, в которых может реализовываться неоднородное состояние. Дальнедействующее кулоновское отталкивание сужает область существования неоднородного состояния. Поскольку величина этого отталкивания, а также свойства образца, такие как угол подкрутки, зависят от условий эксперимента и качества образца, то полученные результаты могут объяснить расхождение в поведении проводимости различных образ-

цов с допированием, которое наблюдается в экспериментах.

Работа выполнена при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты # 19-02-00421 и 19-52-50015).

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

1. E. Dagotto, *Science* **309**, 257 (2005).
2. E. Dagotto, T. Hotta, and A. Moreo, *Phys. Rep.* **344**, 1 (2001).
3. S. Yamaguchi, Y. Okimoto, H. Taniguchi, and Y. Tokura, *Phys. Rev. B* **53**, R2926 (1996).
4. K. I. Kugel, A. L. Rakhmanov, A. O. Sboychakov, F. V. Kusmartsev, N. Poccia, and A. Bianconi, *Supercond. Sci. Technol.* **22**, 014007 (2009).
5. A. L. Rakhmanov, A. V. Rozhkov, A. O. Sboychakov, and F. Nori, *Phys. Rev. B* **87**, 075128 (2013).
6. А. Л. Рахманов, К. И. Кугель, М. Ю. Каган, А. В. Рожков, А. О. Сбойчаков, *Письма в ЖЭТФ* **105**, 768 (2017).
7. J. T. Park, D. S. Inosov, Ch. Niedermayer et al. (Collaboration), *Phys. Rev. Lett.* **102**, 117006 (2009).
8. A. Narayanan, A. Kiswandhi, D. Graf, J. Brooks, and P. Chaikin, *Phys. Rev. Lett.* **112**, 146402 (2014).
9. A. V. Rozhkov, A. O. Sboychakov, A. L. Rakhmanov, and F. Nori, *Phys. Rep.* **648**, 1 (2016).
10. A. L. Rakhmanov, A. V. Rozhkov, A. O. Sboychakov, and F. Nori, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 206801 (2012).
11. A. O. Sboychakov, A. V. Rozhkov, A. L. Rakhmanov, and F. Nori, *Phys. Rev. B* **88**, 045409 (2013).
12. Y. Cao, V. Fatemi, A. Demir, S. Fang, S. L. Tomarken, J. Y. Luo, J. D. Sanchez-Yamagishi, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, R. C. Ashoori, and P. Jarillo-Herrero, *Nature* **556**, 80 (2018).
13. X. Lu, P. Stepanov, W. Yang, M. Xie, M. A. Aamir, I. Das, C. Urgell, K. Watanabe, T. Taniguchi, G. Zhang, A. Bachtold, A. H. MacDonald, and D. K. Efetov, *Nature* **574**, 653 (2019).
14. Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, and P. Jarillo-Herrero, *Nature* **556**, 43 (2018).
15. Т. Т. Heikkilä, N. В. Kopnin, and G. E. Volovik, *Письма в ЖЭТФ* **94**, 252 (2011).
16. G. E. Volovik, *Письма в ЖЭТФ* **107**, 517 (2018).
17. A. O. Sboychakov, A. V. Rozhkov, A. L. Rakhmanov, and F. Nori, *Phys. Rev. B* **100**, 045111 (2019).
18. S. L. Tomarken, Y. Cao, A. Demir, K. Watanabe, T. Taniguchi, P. Jarillo-Herrero, and R. C. Ashoori, *Phys. Rev. Lett.* **123**, 046601 (2019).
19. U. Zondiner, A. Rozen, D. Rodan-Legrain, Y. Cao, R. Queiroz, T. Taniguchi, K. Watanabe, Y. Oreg, F. von Oppen, A. Stern, E. Berg, P. Jarillo-Herrero, and S. Piani, *Nature* **582**, 203 (2020).
20. A. O. Sboychakov, A. V. Rozhkov, and A. L. Rakhmanov, *Phys. Rev. B* **102**, 155142 (2020).
21. J. M. B. Lopes dos Santos, N. M. R. Peres, and A. H. Castro Neto, *Phys. Rev. B* **86**, 155449 (2012).
22. P. San-Jose, J. González, and F. Guinea, *Phys. Rev. Lett.* **108**, 216802 (2012).
23. S. Sorella and E. Tosatti, *EPL (Europhysics Letters)* **19**, 699 (1992).
24. T. O. Wehling, E. Şaşıoğlu, C. Friedrich, A. I. Lichtenstein, M. I. Katsnelson, and S. Blügel, *Phys. Rev. Lett* **106**, 236805 (2011).
25. Л. Д. Ландау, Е. М. Лифшиц, *Статистическая физика. Часть 1*, Физматлит, М. (1995).
26. J. Lorenzana, C. Castellani, and C. Di Castro, *Phys. Rev. B* **64**, 235127 (2001).
27. A. O. Sboychakov, K. I. Kugel, and A. L. Rakhmanov, *Phys. Rev. B* **76**, 195113 (2007).

Universal T/B scaling behavior of heavy fermion compounds (Mini-review)

V. R. Shaginyan^{+*1)}, A. Z. Msezane^{*}, J. W. Clark^{×°}, G. S. Japaridze^{*}, Y. S. Leevik[∇]

⁺Petersburg Nuclear Physics Institute, National Research Center Kurchatov Institute, 188300 Gatchina, Russia

^{*}Clark Atlanta University, Atlanta, GA 30314, USA

[×]McDonnell Center for the Space Sciences & Department of Physics, Washington University, St. Louis, MO 63130, USA

[°]Centro de Investigação em Matemática e Aplicações, University of Madeira, 9020-105 Funchal, Madeira, Portugal

[∇]National Research University Higher School of Economics, 194100 St. Petersburg, Russia

Submitted 5 October 2020
Resubmitted 23 October 2020
Accepted 24 October 2020

DOI: 10.31857/S1234567820220127

Topological approach is a powerful method to gain information about a wide class of physical systems. Knowledge of the topological properties allows us to improve a general knowledge about physical systems without solving specific equations, which describe concrete systems and are often very complicated. As usually, the microscopic approach to a heavy fermion (HF) metal (for example, computer simulations) gives only particular information about specific solids, but not about universal features, inherent in the wide class of HF compounds. HF compounds can be viewed as the new state of matter, since their behavior near the topological fermion condensation quantum phase transition (FCQPT) acquire important similarities, making them universal. The idea of this phase transition, forming experimentally discovered flat bands, started long ago, in 1990 [1–3]. At first, this idea seemed to be a curious mathematical exercise, and now it is proved to be rapidly expanding field with uncountable applications [1, 2, 4–7].

The scaling behavior of HF compounds is a challenging problem of condensed matter physics [6, 8, 9]. It is generally assumed that scaling with respect to T/B (temperature-magnetic field ratio) is related to a quantum critical point (QCP) that represents the endpoint of a phase transition being tuned to $T = 0$ by such control parameters as magnetic field, pressure, and composition of the heavy-fermion compounds. As soon as the tuned endpoint of the phase transition reaches $T = 0$, it becomes a quantum phase transition (QPT). At QCP involved quantum fluctuations like valence, magnetism,

etc. can take place and influence on the properties of system in question [9, 8]. Fluctuations can also occur at second-order phase transitions, but in all cases the temperature range of these fluctuations is very narrow; in contrast, T/B scaling can span a few orders of magnitude in T/B [6]. An attendant problem to be addressed by theory stems from the experimental finding that scaling behavior can take place without both QCP realization and effective mass M^* divergence [8]. The divergence of effective mass M^* at $T \rightarrow 0$ is of crucial importance for understanding technological applications of quantum materials. For example, the divergence leads to the high heat capacity C of quantum material, while under the application of magnetic field both M^* and C diminishes. As a result, one can exploit this property, for example, constructing low temperature refrigerators. To solve these problems, one needs to have a reliable theoretical framework for analysis of experimental facts related to the scaling behavior. A universal T/B scaling behavior is generated by quasiparticles belonging to flat bands, formed by topological FCQPT. In narrow electronic bands in which the Coulomb interaction energy becomes comparable to the bandwidth, interactions drive the topological FCQPT; as a result, at $T = 0$ flat bands are emerged. Such flat bands in twisted graphene have been experimentally observed, see e.g. [3].

In our mini-review, we show that the fermion condensation (FC) theory, which entails the topological FCQPT, provides the appropriate framework for describing and analyzing the universal scaling behavior of HF compounds. We show that T/B scaling behavior can be observed in a wide range of T/B values, pro-

¹⁾e-mail: vrshag@thd.pnpi.spb.ru

vided the given HF compound is located near a topological FCQPT. We consider the HF metal YbCo_2Ge_4 , and show that its scaling behavior is violated at low temperatures. The results of the FC theory are in good agreement with experimental observations collected on different strongly correlated Fermi systems like HF metals, quasicrystals and quantum magnets, holding quantum spin liquids.

One of the main experimental manifestations of the topological FCQPT phenomenon is the scaling behavior of the physical properties of HF compounds located near such a phase transition. As an example, Fig. 1

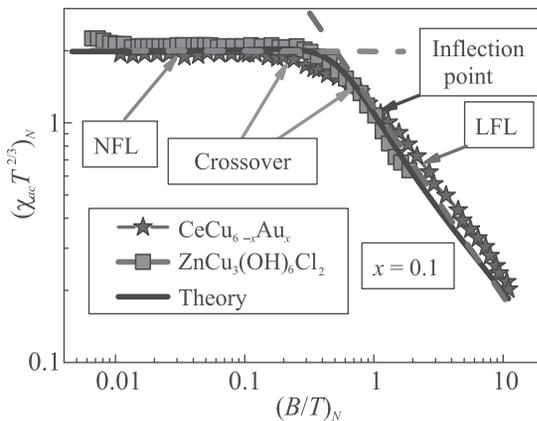


Fig. 1. (Color online) Universal B/T scaling of strongly correlated Fermi systems. Scaling of the HF metal $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ is extracted from data [10], and that of $\text{ZnCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2$ from data in [11]. At $B/T \ll 1$ the systems demonstrate the non-Fermi liquid behavior with $\chi \propto M^*$. At $B/T \gg 1$ the systems exhibit the Landau Fermi liquid behavior. The non-Fermi liquid, crossover and the Landau Fermi liquid behavior are indicated by the arrows

displays the universal T/B scaling behavior of very different HF compounds like the HF metal $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$ and the quantum spin liquid of the frustrated insulator herbertsmithite $\text{ZnCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2$ [10, 11]. The existence of such universal behavior, exhibited by various and very distinctive strongly correlated Fermi systems, supports the conclusion that HF compounds represent a new state of matter formed by FCQPT [7].

We also consider the statement that the scaling behavior can be observed without the presence of both QCP and divergent effective mass M^* [8]. The T/B scaling behaviors experimentally observed in measurements of the magnetization dM/dT on the HF metals YbCo_2Ge_4 [8]. We show that the HF metal YbCo_2Ge_4 is located before the topological FCQPT and, therefore, exhibiting the Landau Fermi liquid behavior at sufficiently low temperatures. For the same reason, the effective mass does not diverge at the lowest tempera-

tures. Based both on the theoretical consideration and the experimental facts, we demonstrate that there is no scaling without both the topological FCQPT and the divergence of the effective mass. Thus, HF compounds exhibit the T/B scaling down to the lowest temperatures, provided these systems are located at the topological FCQPT. We suggest that measurements of the thermodynamic properties at very low temperatures and magnetic fields on YbCo_2Ge_4 can clarify the physics of scaling behavior accompanied by the divergence of the effective mass. We outline that the divergence of effective mass M^* at $T \rightarrow 0$ is of crucial importance for projecting possible technological applications of quantum materials like HF compounds. We also demonstrate that the fermion condensation theory gives a good description of the scaling behavior of various HF compounds. As a result, the theory can be used as well to evaluate the technological perspectives of quantum materials.

We thank V. A. Khodel for stimulating and fruitful discussions.

This work was partly supported by U. S. Department of Energy, Division of Chemical Sciences, Office of Basic Energy Sciences, Office of Energy Research. J. W. Clark is indebted to the University of Madeira for gracious hospitality during periods of extended residence.

Full text of the paper is published in JETP Letters journal. DOI: 10.1134/S0021364020220026

1. V. A. Khodel and V. R. Shaginyan, JETP Lett. **51**, 553 (1990).
2. G. E. Volovik, JETP Lett. **53**, 222 (1991).
3. Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, and P. Jarillo-Herrero, Nature **556**, 43 (2018).
4. V. A. Khodel, V. R. Shaginyan, and V. V. Khodel, Phys. Rep. **249**, 1 (1994).
5. G. E. Volovik, JETP Lett. **107**, 516 (2018).
6. V. R. Shaginyan, M. Ya. Amusia, A. Z. Msezane, and K. G. Popov, Phys. Rep. **492**, 31 (2010).
7. M. Ya. Amusia and V. R. Shaginyan, *Strongly Correlated Fermi Systems: A new State of Matter*, Springer Tracts in Modern Physics, Springer, Berlin (2020), v. 283.
8. A. Sakai, K. Kitagawa, K. Matsubayashi, M. Iwatani, and P. Gegenwart, Phys. Rev. B **94**, 041106(R) (2016).
9. Y. Komijani and P. Coleman, Phys. Rev. Lett. **122**, 217001 (2019).
10. A. Schröder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H. V. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman, Nature **407**, 351 (2000).
11. J. S. Helton, K. Matan, M. P. Shores, E. A. Nytko, B. M. Bartlett, Y. Qiu, D. G. Nocera, and Y. S. Lee, Phys. Rev. Lett. **104**, 147201 (2010).

Квантовое перепутывание и фазовый контроль неклассических электромагнитных полей при взаимодействии с атомными системами

Д. В. Пополитова⁺¹⁾, О. В. Тихонова^{+*1)}

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

^{*}Научно-исследовательский институт ядерной физики им. Д. В. Скобельцына, 119234 Москва, Россия

Поступила в редакцию 8 октября 2020 г.

После переработки 13 октября 2020 г.

Принята к публикации 14 октября 2020 г.

Аналитически исследовано взаимодействие трехуровневого атома с двумя модами квантового поля. Обнаружено сильное квантовое перепутывание между отдельными частями рассматриваемой составной системы и продемонстрирована возможность его контролируемого изменения. На основе квантового перепутывания, возникающего между первоначально независимыми квантовыми полями при взаимодействии с атомом, разработаны методы передачи и обмена фазовой информацией между полевыми модами, а также непосредственного измерения фазовых характеристик неизвестного состояния входного поля.

DOI: 10.31857/S1234567820220139

Важным направлением исследований современной квантовой оптики и атомной физики является анализ неклассических состояний света и их взаимодействия с веществом. Целый ряд эффектов, известных для классических полей [1, 2], требует отдельного анализа в случае квантового поля. В настоящее время возможна генерация в эксперименте целого ряда неклассических состояний электромагнитного поля, таких как фоковские состояния, когерентные состояния с малым числом фотонов, сжатые состояния, состояния вида “кот Шредингера” и т.д. [3–7]. Среди них сжатые состояния света представляются наиболее привлекательными благодаря своим уникальным свойствам, которые очень перспективны для целого ряда важных практических приложений. Такие неклассические состояния света могут быть получены, например, в процессе параметрического рассеяния и характеризуются сильными корреляциями между фотонами [8–11]. Кроме того, имеет место существенное уменьшение дисперсии одной из квадратур поля, что открывает новые возможности для высокоточных измерений с подавлением уровня шума ниже дробового [10]. В настоящее время возможна генерация сжатых состояний света со средним числом фотонов до 10^{15} на моду [11]. В этом смысле такие состояния света можно отнести к макроскопическим квантовым состояниям.

Неклассические состояния света оказываются крайне востребованными в области квантовых информационных технологий для решения задач хранения и передачи квантовой информации. Ключевым моментом разработанных протоколов и алгоритмов является сильное квантовое перепутывание между используемыми полевыми состояниями. Преимущество квантового перепутывания состоит в возможности извлекать информацию об одной подсистеме, производя измерения над другой. Поэтому важной задачей является разработка схем по эффективному перепутыванию неклассических состояний электромагнитного поля, а также фазовый контроль и передача фазовой информации между полевыми подсистемами. Одним из возможных путей создания сильно перепутанных полевых состояний является их взаимодействие с атомной системой. В этом случае квантовое перепутывание между первоначально независимыми полями возникает опосредованно за счет их взаимодействия и обмена энергией с атомом. При этом количественная оценка перепутывания в такой многокомпонентной системе представляет собой отдельную и трудную задачу.

В данной работе аналитически решена задача о резонансном взаимодействии трехуровневого атома с двумя модами квантованного поля. Предполагается, что атом находится в микрорезонаторе, размеры которого достаточно малы, чтобы обеспечить высокую плотность фотонов. Рассмотрены различ-

¹⁾e-mail: dvpopolitova@gmail.com; ovtikhonova@mail.ru

ные начальные состояния полей, включая состояние сжатого вакуума. Продемонстрировано возникновение сильного квантового перепутывания как между атомной и полевой подсистемами, так и между первоначально независимыми электромагнитными полями. Получена количественная характеристика возникающего многочастичного перепутывания. Анализируется возможность управления степенью наблюдаемого перепутывания. Предложены схемы по регистрации и передаче фазовой информации между полями за счет наличия перепутывания между ними, возникающего непосредственно из-за взаимодействия через атомную подсистему.

Теоретический подход. Аналитически решена задача о резонансном взаимодействии трехуровневой атомной системы с двумя модами квантового электромагнитного поля. Атом рассматривается в так называемой Λ -конфигурации с возможными переходами, вызываемыми резонансно первым полем (с частотой ω_1) между нижним и верхним атомными уровнями и вторым полем (с частотой ω_2) – между вторым нижним уровнем и верхним. Данная модельная атомная система позволяет также описать возбуждение наноразмерных квантовых точек и полупроводниковых квантовых ям, допированных примесями.

Взаимодействие атома с двумя модами квантового электромагнитного поля исследуется в рамках нестационарного уравнения Шредингера с учетом обеих степеней свободы квантового поля:

$$i\hbar \frac{\partial \Psi}{\partial t} = (\hat{H}_{\text{atom}} + \hat{H}_{\text{field}1} + \hat{H}_{\text{field}2} + \hat{W}_1 + \hat{W}_2)\Psi. \quad (1)$$

Полный гамильтониан состоит из свободных гамильтонианов атома и полей \hat{H}_{atom} и $\hat{H}_{\text{field}1,2}$ соответственно и взаимодействия атома с каждым полем $\hat{W}_i = d\varepsilon_{0i}q_i$, рассматриваемого в дипольном приближении. В принятых обозначениях $\mathbf{d} = e\mathbf{r}$ – оператор дипольного момента атома, q_i – полевая квадратура в каждой моде, а ε_{0i} – соответствующая нормировочная константа, которая влияет на эффективность взаимодействия между атомом и полем и зависит от объема взаимодействия L^3 : $\varepsilon_{0i} = \sqrt{(4\pi\hbar\omega_i)/L^3}$. Сила этого взаимодействия может быть значительно увеличена за счет малых размеров микрополости, настроенной на обе частоты воздействующих полей. Отметим, что в настоящее время малые размеры используемых микрополостей и резонаторов позволяют экспериментально наблюдать вакуумные осцилляции Раби на наносекундных масштабах времен [5]. В нашем случае эффективность взаимодействия атомной системы и поля определяется средней плот-

ностью фотонов $\langle N \rangle/L^3$, достаточно большой, чтобы характерные осцилляции Раби происходили значительно быстрее любых процессов декогеренции в системе. Такие условия фактически соответствуют режиму “сильного” поля и позволяют корректно описать динамику квантовой системы в рамках нестационарного уравнения Шредингера без учета диссипаций.

Уравнение (1) решается разложением зависящей от времени волновой функции полной системы по свободным от взаимодействия атомным функциям $\varphi_n(r)$ и фоковским состояниям каждой моды поля $\Phi_m(q_i)$:

$$\psi(\mathbf{r}, q_1, q_2, t) = \sum_{nkm} C_{nkm}(t) \varphi_n(\mathbf{r}, t) \Phi_k(q_1) \times \Phi_m(q_2) e^{-\frac{i}{\hbar} E_{nkm} t} \quad (2)$$

с обозначением суммарной энергии в системе $E_{nkm} = E_n + \hbar\omega_1(k + 1/2) + \hbar\omega_2(m + 1/2)$.

Подстановка решения (2) в уравнение (1) с использованием приближения вращающейся волны приводит к системе линейных дифференциальных уравнений первого порядка для амплитуд вероятностей $C_{nkm}(t)$ найти атом в состоянии φ_n , а также k и m фотонов в первой и второй моде поля соответственно:

$$\begin{cases} i\hbar \dot{C}_{1(k+1)m} = -d_{13}\varepsilon_{01} C_{3km} \sqrt{\frac{k+1}{2}}, \\ i\hbar \dot{C}_{2k(m+1)} = -d_{23}\varepsilon_{02} C_{3km} \sqrt{\frac{m+1}{2}}, \\ i\hbar \dot{C}_{3km} = -d_{13}\varepsilon_{01} C_{1(k+1)m} \sqrt{\frac{k+1}{2}} - \\ - d_{23}\varepsilon_{02} C_{2k(m+1)} \sqrt{\frac{m+1}{2}}. \end{cases} \quad (3)$$

Здесь $d_{ij} = \langle \varphi_i | e\mathbf{r} | \varphi_j \rangle$ – матричный элемент дипольного момента электрона для перехода между атомными уровнями с номерами i и j . Система (3) решается аналитически для каждой связанной тройки амплитуд вероятностей. В качестве начального состояния предполагается, что атом находится в некоторой суперпозиции своих собственных состояний, а квантовые поля представимы в виде суперпозиции фоковских состояний с некоторыми относительными фазами, включая когерентные поля с малым средним числом фотонов и состояния сжатого вакуума. Когерентное состояние $|\alpha\rangle$ с фазой θ может быть представлено в виде суперпозиции фоковских состояний следующим образом:

$$|\alpha_\theta\rangle = \sum_n \exp\left(-\frac{|\alpha|^2}{2}\right) \frac{|\alpha|^n \exp(in\theta)}{\sqrt{n!}} \Phi_n. \quad (4)$$

Известно, что для такого состояния статистика по числу фотонов представляет собой распределе-

ние Пуассона со средним числом фотонов, равным $\langle N \rangle = |\alpha|^2$, и дисперсией числа фотонов $D_N = \langle N \rangle$. Состояние сжатого вакуума характеризуется более широким распределением, которое содержит только четные номера фоковских состояний [12]:

$$\Psi_{sq} = \sum_n C_{2n} \Phi_{2n}, \quad (5)$$

$$C_{2n} = (-1)^n \sqrt{\frac{2\gamma}{1+\gamma^2}} \frac{\sqrt{(2n)!}}{2^n n!} \left(\frac{1-\gamma^2}{1+\gamma^2} \right)^n e^{i2n\theta}. \quad (6)$$

Здесь γ – это параметр сжатия, который связан со средним числом фотонов $\langle N \rangle = \frac{1}{4} \left(\gamma - \frac{1}{\gamma} \right)^2$. Дисперсия числа фотонов в этом случае оказывается существенно больше дисперсии для когерентного поля: $D_n = 2\langle N \rangle^2 + 2\langle N \rangle$.

Используя зависящую от времени волновую функцию полной системы (2), можно получить любую информацию о динамике и взаимодействии атомной и полевых подсистемах, включая квантовое перепутывание между ними. Например, зависящие от времени населенности атомных уровней $P_n(t)$ и вероятности различных фоковских состояний для каждой моды поля $W_k(t)$ и $\tilde{W}_m(t)$ имеют вид:

$$P_n(t) = \sum_k \sum_m |C_{nkm}|^2, \quad (7)$$

$$W_k(t) = \sum_n \sum_m |C_{nkm}|^2, \quad (8)$$

$$\tilde{W}_m(t) = \sum_n \sum_k |C_{nkm}|^2. \quad (9)$$

Основная цель данной статьи – детально исследовать перепутывание, возникающее в такой многокомпонентной системе, проанализировать его влияние на динамику отдельных подсистем и обмен квантовой информацией между ними.

Результаты. Существует много способов охарактеризовать степень перепутывания между двумя подсистемами [13–16], в то время как перепутывание между всеми компонентами в трехчастичной системе довольно сложно описать количественно. Для анализа перепутывания в многочастичной системе могут использоваться два основных подхода. Первый предполагает характеристику одной из взаимодействующих подсистем независимо от поведения и динамики других. Фактически такой подход предполагает усреднить по всем переменным, кроме относящихся к рассматриваемой подсистеме, и найти ее перепутывание с остальной частью всей системы. Другой способ состоит в выделении двух систем, между которыми анализируется перепутывание, при этом оно

усредняется по переменным всех оставшихся подсистем. Для трехфотонных систем такой анализ был выполнен в работе [17].

Квантовое перепутывание как проявление динамики. Анализ эволюции атомной системы независимо от состояний обоих квантовых полей предполагает усреднение по полевым переменным. Тогда в общем случае атом находится в смешанном состоянии, а не чистом, из-за его взаимодействия с квантовыми полями и характеризуется некоторой редуцированной матрицей плотности со следующими матричными элементами:

$$\rho_{ij}^{at} = \sum_{n,k} C_{ink} C_{jnk}^* \exp\left(\frac{i(E_j - E_i)t}{\hbar}\right). \quad (10)$$

Диагональные элементы этой матрицы точно совпадают с зависящими от времени населенностями атомных уровней (7), в то время как недиагональные элементы хранят информацию о фазовой когерентности в сформированном атомном состоянии. Перепутывание между атомом и квантованным полем (обеими модами) характеризуется параметром Шмидта [13, 14, 18], который задается формулой:

$$K = [Sp(\rho_{at}^2)]^{-1}. \quad (11)$$

С учетом матричных элементов (10) параметр Шмидта принимает следующий вид:

$$K = \left[\sum_{ij} |\rho_{ij}^{at}|^2 \right]^{-1}. \quad (12)$$

Видно, что как диагональные, так и недиагональные матричные элементы определяют значение параметра Шмидта. Чем больше этот параметр, тем выше степень перепутывания. Минимальное значение этого параметра равно 1 и соответствует случаю полной независимости атома от полей. В таких условиях происходит простая факторизация состояний атома и полевой подсистемы, и атом находится в чистом состоянии. Максимальное значение параметра Шмидта зависит от числа базисных собственных состояний атома и для нашей системы равно 3. Оно соответствует случаю, когда атом находится в смешанном состоянии, и при этом все недиагональные матричные элементы равны нулю. Такое состояние можно назвать наиболее смешанным, поскольку отсутствует любая информация о фазах. Таким образом, параметр Шмидта можно использовать не только как степень перепутывания с полевой подсистемой, но и как характеристику смешанности атомного состояния. В то же время значение, обратное параметру

Шмидта, часто рассматривают как степень чистоты атомного состояния, поскольку в случае чистого состояния $S_p(\rho_{at}^2) = S_p(\rho_{at}) = 1$.

Для 3-х уровневой системы в двух резонансных когерентных полях были обнаружены эффекты коллапса и возрождения атомных переходов, которые характеризуются наличием ярко выраженного “плато” на временных зависимостях населенностей атомных состояний [19]. Пример такой динамики для населенности нижнего атомного состояния представлен на рис. 1. Аналогичным поведением характеризуют-

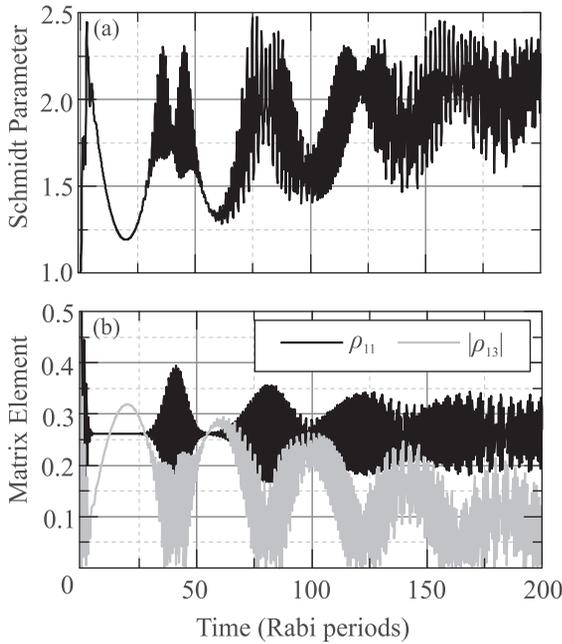


Рис. 1. Временная динамика параметра Шмидта K (a), а также населенности нижнего атомного уровня и недиагонального элемента матрицы плотности атома ρ_{13} (b), полученные при взаимодействии атома в начальном состоянии $\phi_{at}(t=0) = \frac{\varphi_1 + \varphi_2}{\sqrt{2}}$ с когерентными полями с $\langle N \rangle = 10$

ся также среднее число фотонов и его дисперсия для каждой полевой моды. Казалось бы, в период “коллапса” система не испытывает никакой динамики. Однако это не так. Было обнаружено, что в период “коллапса” недиагональные элементы матрицы плотности атомной системы претерпевают существенное изменение, что продемонстрировано на рис. 1 для случая начального атомного состояния в виде суперпозиции волновых функций двух нижних атомных уровней с нулевой относительной фазой $\Delta = 0$ между ними:

$$\psi(\mathbf{r}, t=0) = \frac{\varphi_1 + e^{i\Delta}\varphi_2}{\sqrt{2}}. \quad (13)$$

Как следствие, параметр Шмидта также меняется со временем, уменьшаясь в первой половине “плато”. Динамика параметра Шмидта, представленная на рис. 1, однозначно свидетельствует о возникновении высокой степени квантового перепутывания атома с двумя полями в процессе взаимодействия.

Отметим, что наибольшая степень перепутывания достигается при относительной фазе $\Delta = \pi/2$, поскольку в этом случае заселяются все квазиэнергетические состояния системы. В случае состояния сжатого вакуума, эффекты “коллапса” и “возрождения” не возникают. Более того, в [19] было показано, что для сжатых состояний динамика атомных населенностей не зависит от относительной фазы состояний в начальном условии вида (13) и, как следствие, не реализуется формирование “темного” состояния. Однако чувствительность по отношению к фазе в начальном состоянии (13) все-таки имеет место и проявляется в значительном изменении среднего по времени значения параметра Шмидта в диапазоне от 2 до 3 для различных значений Δ . Это означает, что сжатое состояние уже на начальных временах демонстрирует более высокую степень перепутывания с атомной системой, чем когерентное поле. Таким образом, варьируя относительную фазу в (13), оказывается возможным управлять режимом и степенью перепутывания между атомной и полевой подсистемами.

Перепутывание между двумя квантовыми полями. Наибольший интерес представляет квантовое перепутывание двух первоначально независимых полей, возникающее при взаимодействии с атомом вне зависимости от состояния атомной подсистемы.

В случае усреднения по атомным степеням свободы полевые моды оказываются в смешанном состоянии и описываются матрицей плотности. Известно, что при таких условиях параметр Шмидта не может правильно охарактеризовать их перепутывание. Одним из возможных способов решения этой проблемы является использование энтропии фон Неймана для характеристики чистоты или того, насколько смешано изучаемое двухчастичное состояние, и вычисление взаимной информации для определения степени перепутывания или корреляций [18]. Для проведения такого анализа энтропия фон Неймана вычислялась следующим образом:

$$S(\rho) = -Tr(\rho \log_2 \rho) = -\sum_i \lambda_i \log_2 \lambda_i. \quad (14)$$

Здесь матрица плотности ρ описывает двухчастичное состояние двух квантовых полей, усреднен-

ное по атомным переменным, а λ_i – собственные значения этой матрицы. Элементы двухчастичной матрицы плотности определяются как:

$$\rho_{k_1 m_1}^{k_2 m_2} = \sum_n C_{n k_1 m_1} C_{n k_2 m_2}^* e^{(-\frac{i}{\hbar}(E_{k_1 m_1} - E_{k_2 m_2})t)}, \quad (15)$$

где суммирование ведется по всем возможным атомным состояниям. Соответствующие “одночастичные” полевые матрицы плотности, редуцированные по одному или второму полю, определяются следующими матричными элементами:

$$(\rho_{\text{red}1})_{k_1}^{k_2} = \sum_m \rho_{k_1 m}^{k_2 m}, (\rho_{\text{red}2})_{m_1}^{m_2} = \sum_k \rho_{k m_1}^{k m_2}. \quad (16)$$

С использованием энтропии фон Неймана, рассчитанной для двухчастичного состояния полевой подсистемы и редуцированных по каждому полю матриц плотности, можно вычислить взаимную информацию, которая и характеризует перепутывание полевых мод:

$$I_{12} = S(\rho_{\text{red}1}) + S(\rho_{\text{red}2}) - S(\rho). \quad (17)$$

Отметим, что фактически речь идет о квадратном перепутывании, которое следует отличать от перепутывания полей по пространственным или частотным переменным [20].

На рисунке 2 представлены временные зависимости энтропии для двухчастичного состояния двух полей и для каждого поля в отдельности, а также динамика взаимной информации, полученные для полей, первоначально находящихся в когерентном состоянии или в состоянии сжатого вакуума, и атома с начальным состоянием $\phi_{at}(t=0) = \frac{\varphi_1 + \varphi_2}{\sqrt{2}}$.

Для такого начального условия для атома и изначально одинаковых полей энтропии обоих полей оказываются одинаковыми. Изначально все энтропии, а также взаимная информация равны нулю, поскольку два поля независимы друг от друга, и каждое поле находится в чистом состоянии. Однако из-за взаимодействия с атомом либо двухчастичное состояние полевой подсистемы, либо отдельное состояние каждого поля становится смешанным, и обнаруживаются существенные корреляции между полевыми подсистемами. Этот эффект характеризуется увеличением со временем энтропии каждой полевой моды и взаимной информации, приведенных на рис. 2. При этом в случае когерентных полей обнаружены более регулярная динамика взаимной информации и более высокая степень квантового перепутывания полевых мод по сравнению со случаем сжатых полей. Для состояний сжатого вакуума приведенные зависимости практически сразу выходят на некоторый

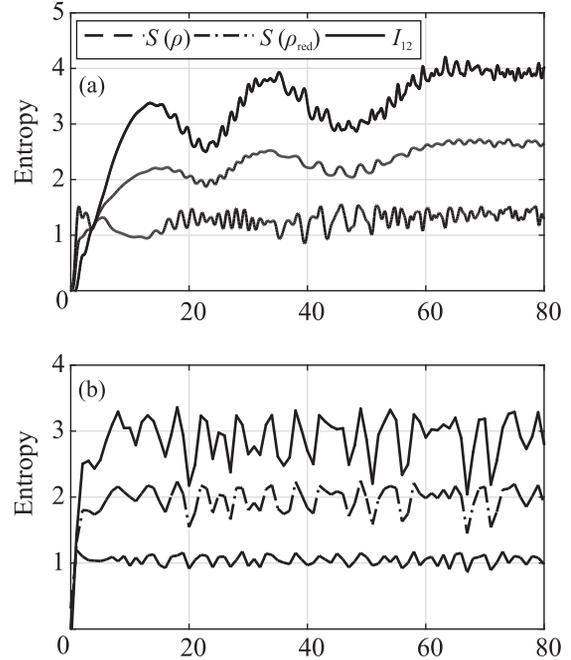


Рис. 2. Временная зависимость энтропии фон Неймана, полученная для двухчастичного состояния двух полей и для каждого поля в отдельности, а также эволюция взаимной информации для двух изначально когерентных полей (а) и двух состояний сжатого вакуума (б) со средним числом $\langle N \rangle = 3$ и начального состояния атома (13) с $\Delta = 0$

средний по времени уровень, что означает формирование определенного смешанного двухчастичного состояния. Отдельный анализ, проведенный в рамках квазиэнергетических состояний системы, показал, что возникают перепутанные состояния, отвечающие нечетному числу N фотонов в одной полевой моде и вакууму в другой. Такие состояния преимущественно формируются из-за особенности фотонной статистики состояния сжатого вакуума, заключающейся в превалирующем вкладе вакуумного состояния. В этом случае энтропия одной моды поля оказывается близка к 2.

Возникает вопрос о возможности управления квантового перепутывания полевых мод в данных условиях. Это может быть реализовано варьированием относительной фазы атомных состояний, входящих в начальное условие (13). Действительно, было обнаружено, что величина взаимной информации существенно зависит от этой относительной фазы. Данные представлены на рис. 3 и демонстрируют хорошо выраженную фазовую зависимость.

При этом максимальное перепутывание наблюдается при $\Delta = 0$, в то время как случай $\Delta = \pi$ соответствует полностью факторизованному состоянию

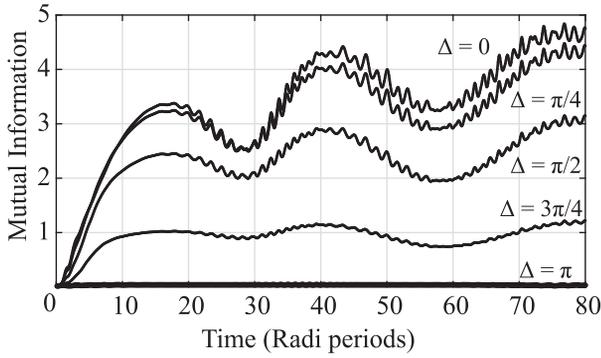


Рис. 3. Временные зависимости взаимной информации двух когерентных полей при различных значениях относительной фазы Δ между атомными состояниями в начальном условии (13)

двух полей. Это связано с тем, что для когерентных полей при условии $\Delta = \pi$ формируется “темное состояние”, т.е. имеет место деструктивная интерференция переходов в верхнее атомное состояние, приводящая к нулевой вероятности его заселения. В этом случае поля остаются независимыми в соответствии с начальным условием. Таким образом, именно заселение верхнего состояния оказывается ответственным за перепутывание полевых мод, а его населенность напрямую зависит от относительной фазы атомных состояний в начальном условии для атомной подсистемы.

Фазовый контроль полевых состояний. Обнаруженное квантовое перепутывание полевых мод открывает возможность для обмена и передачи квантовой информации между полями, включая фазовую. В простейшем случае передачу фазы от одного поля к другому можно продемонстрировать на следующем примере. Пусть в первой моде имеется k фотонов, начальное атомное состояние выбрано в виде (13), а состояние второго поля характеризуется суперпозицией двух фоковских состояний с относительной фазой θ :

$$\psi(\mathbf{r}, t = 0) = \frac{\varphi_1 + e^{i\Delta}\varphi_2}{\sqrt{2}} \Phi_k \frac{\Phi_m + e^{i\theta}\Phi_{m+1}}{\sqrt{2}}. \quad (18)$$

В процессе взаимодействия с атомной подсистемой заселяется целый набор фоковских состояний первого поля. Причем проекционное измерение при условии, что атом находится в основном состоянии, а во второй моде обнаружено m фотонов, приводит к когерентной суперпозиции фоковских состояний первого поля в виде $\frac{\Phi_k + e^{i\theta'}\Phi_{k+1}}{\sqrt{2}}$ с относительной фазой θ' . На рисунке 4 представлена фаза θ' , переданная первому полю, в зависимости от исходной фазы θ

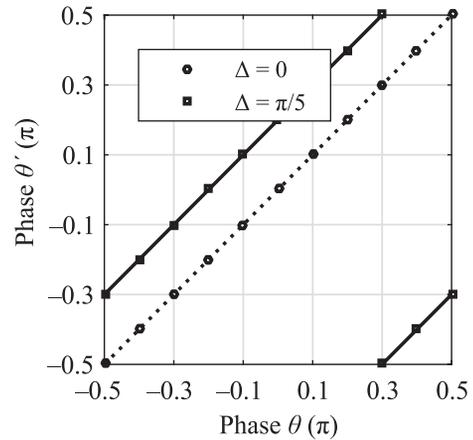


Рис. 4. Относительная фаза θ' , переданная первому полю, в зависимости от исходной фазы θ между состояниями второй моды при двух значениях $\Delta = 0$ и $\Delta = \pi/5$ в начальном условии для системы (18)

между состояниями второй моды при двух значениях Δ .

Видно, что при нулевой относительной фазе атомных состояний происходит точная передача фазы от одного поля к другому. В общем случае атомная система сдвигает переданную фазу на величину Δ , так что выполнено условие: $\theta' = \theta + \Delta$. Таким образом, оказывается возможным не только осуществлять передачу фазовой информации от одного поля к другому, но и управлять этой фазой за счет ее сдвига на величину Δ . Еще одним важным аспектом является измерение относительной фазы неизвестного полевого состояния. В этом случае атом необходимо приготовить в виде суперпозиции нижнего и верхнего состояний (для определенности положим $\Delta = 0$), а контрольное поле – с точным числом фотонов m . Пусть пробное поле в начальный момент времени характеризуется суперпозицией фоковских состояний с неизвестной относительной фазой θ . Тогда измерение вероятности найти атом в основном состоянии и m фотонов во втором поле дает возможность получить информацию о фазе входного пробного поля. На рисунке 5 представлена зависимость максимального и минимального по времени значений указанной вероятности в зависимости от фазы пробного поля θ .

Представленные данные демонстрируют хорошо выраженную фазовую зависимость граничных значений искомой вероятности, которые могут быть экспериментально измерены и не зависят от осцилляций по времени, возникающих в процессе взаимодействия. Отметим также, что верхняя граница вероятности оказывается мало чувствительной к конкретным номерам фоковских состояний, входящих в на-

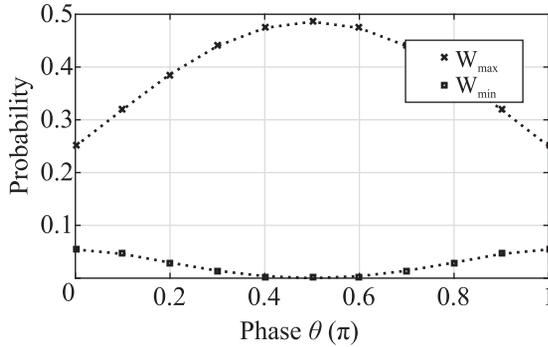


Рис. 5. Зависимость максимального и минимального по времени значений вероятности найти атом в основном состоянии и m фотонов во втором поле в зависимости от фазы пробного поля θ

чальную суперпозицию для пробного поля, что дает практический постоянный контраст при определении фазы. Таким образом, взаимодействие с атомной подсистемой и наведение многочастичного перепутывания дает возможность осуществлять контроль, передачу и измерения фазовых характеристик полевых состояний.

Заключение. В данной работе исследовано резонансное взаимодействие трехуровневого атома с двумя модами квантованного поля и получено аналитическое решение задачи для различных начальных состояний полей, включая когерентное состояние с малым числом фотонов и состояние сжатого вакуума. Продемонстрировано возникновение сильного квантового перепутывания между взаимодействующими атомной и полевой подсистемами. Обнаружено сильное перепутывание между первоначально независимыми полевыми модами, возникающее в результате взаимодействия с атомом. Продемонстрирована возможность управления наблюдаемым перепутыванием за счет варьирования параметров системы и начальных условий. На основе проведенного анализа разработаны методы, позволяющие осуществлять обмен и передачу фазовой информации между квантовыми электромагнитными полями, а также непосредственное измерение фазовых характеристик неизвестного состояния входного поля. Показано, что в этом случае атом фактически выступает передаточным звеном, обеспечивающим связь между полевыми модами. Рассматриваемая система может использоваться в качестве управляемого блока

передачи с многочастичным ресурсом перепутанности, что оказывается очень перспективным для многих приложений в квантовых информационных технологиях.

Исследования выполнены за счет гранта Российского научного фонда # 19-42-04105.

1. M. V. Fedorov, *Atomic and free electrons in a strong light field*, World Scientific, Singapore (1997).
2. Н. Б. Делоне, В. П. Крайнов, УФН **5**, 531 (1998).
3. J. McKeever, A. Boca, A. D. Boozer, R. Miller, J. R. Buck, A. Kuzmich, and H. J. Kimble, *Science* **303**, 1992 (2004).
4. B. Darquie, M. P. A. Jones, J. Dingjan, J. Beugnon, S. Bergamini, Y. Sortais, G. Messin, A. Browaeys, and P. Grangier, *Science* **309**, 454 (2005).
5. C. Santori, M. Petlon, G. Solomon, Y. Dale, and E. Yamamoto, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 1502 (2001).
6. S. Kasivishwanathan, *Phys. Rev. Lett.* **75**, 2116 (1995).
7. T. Sh. Iskhakov, M. V. Chekhova, and G. Leuchs, *Phys. Rev. Lett.* **102**, 183602 (2009).
8. I. N. Agafonov, M. V. Chekhova, and G. Leuchs, *Phys. Rev. A* **82**, 011801 (2010).
9. T. Sh. Iskhakov, I. N. Agafonov, M. V. Chekhova, and G. Leuchs, *Phys. Rev. Lett.* **109**, 150502 (2012).
10. B. E. Anderson, P. Gupta, B. L. Schmittberger, T. Horrom, C. Hermann-Avigliano, K. M. Jones, and P. D. Lett, *Optica* **4**, 752 (2017).
11. M. V. Chekhova, G. Leuchs, and M. Żukowski, *Opt. Commun.* **337**, 27 (2015).
12. M. O. Scully and M. S. Zubairy, *Quantum Optics*, Cambridge University Press, Cambridge (1997).
13. R. Grobe, K. Rzazewski, and J. H. Eberly, *J. Phys. B* **27**, L503 (1994).
14. M. V. Fedorov, M. A. Efremov, P. A. Volkov, and J. H. Eberly, *J. Phys. B* **39**, 467 (2006).
15. O. V. Tikhonova and A. M. Popov, *Laser Phys. Lett.* **3**, 195 (2006).
16. W. K. Wootters, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 2245 (1998).
17. M. V. Fedorov, *Phys. Scr.* **95**(06), 064001 (2020).
18. M. V. Fedorov, P. A. Volkov, and J. M. Mikhailova, *JETP* **115**(1), 15 (2012).
19. D. V. Popolitova and O. V. Tikhonova, *Laser Phys. Lett.* **16**, 125301 (2019).
20. M. V. Fedorov and N. I. Miklin, *Laser Physics* **25**(3), 035204 (2015).

Недипольные эффекты во временах задержки фотоэлектронов из атомов, отрицательных ионов и эндоэдралов

М. Я. Амусья^{+*1)}, Л. В. Чернышева*

⁺Институт физики им. Рака, Еврейский университет, 91904 Иерусалим, Израиль

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

Поступила в редакцию 15 октября 2020 г.

После переработки 15 октября 2020 г.

Принята к публикации 15 октября 2020 г.

В этом Письме исследуются недипольные эффекты во временах задержки фотоэлектронов, испускаемых многоэлектронными атомами, отрицательными ионами и соответствующими эндоэдралами. Необходимые общие формулы получены в рамках приближения случайных фаз с обменом (RPAE), применяемого к атомам, отрицательным ионам и соответствующим образом скорректированного для эндоэдралов. Основное внимание уделяется области низких энергий фотонов, где недипольные эффекты очень малы в полных поперечных сечениях, но становятся заметными в их угловых распределениях. В Письме не только выводятся формулы для недипольных эффектов во временах задержки, но и выполнены соответствующие численные расчеты. Показано, как можно выделить недипольные поправки на эксперименте. Конкретные расчеты проведены для атомов благородных газов Ag и Xe, изоэлектронных им отрицательных ионов Cl^- и I^- и эндоэдралов $\text{Ag}(\text{Cl}^-)@\text{C}_{60}$ и $\text{Xe}(\text{I}^-)@\text{C}_{60}$. Обнаружено, что разница во временах задержки фотоэлектронов, вылетающих вперед и назад, дает прямую информацию о недипольных эффектах. Они оказались вполне измеримыми, и в них заметно влияние наличия фуллереновой оболочки.

DOI: 10.31857/S1234567820220140

1. Целью настоящего Письма является определение вклада недипольных поправок во времена задержки электронов, которые при поглощении фотонов низкой энергии покидают атомы A, отрицательные ионы A^- и эндоэдралы $\text{A}@\text{C}_N$ или $\text{A}^-@\text{C}_N$, представляющие собой A или A^- , помещенные внутри фуллереновой оболочки C_N , построенной из N атомов углерода C. Ионизация фотоном с низкой энергией ω^2 – это процесс, определяемый преимущественно матричными элементами дипольного перехода. Недипольный вклад в полное сечение фотоионизации намного меньше дипольного и отличается дополнительным множителем $(\omega r_A/c)^2 \ll 1$, где r_A – радиус атома, c – скорость света. Малость недипольного вклада в полное сечение усиливается числовым малым фактором.

Однако роль недипольного члена намного больше в угловых распределениях фотоэлектронов, отличающихся от соответствующих дипольных множителем $(\omega r_A/c)$, который намного больше $(\omega r_A/c)^2 \ll 1$ (см., например, [1]). Исследова-

ние недипольных поправок стимулируется интересом к квадрупольным матричным элементам и квадрупольным фазовым сдвигам волновых функций вылетающих электронов. Помимо углового распределения, существует еще один источник информации об этих величинах, а именно, времена задержки электронов, высвобождаемых из атома, иона или эндоэдрала под действием поглощаемого фотона. Их вычисление есть предмет данного Письма.

Теоретический подход к временному описанию процессов в квантовых объектах давно разработан в ряде публикаций [2–5]. Создание лазеров с аттосекундными импульсами позволило измерить длительность процессов фотоионизации атомов. В результате, чисто теоретические разработки были сравнительно недавно дополнены интенсивной экспериментальной деятельностью, приведшей к временному описанию процессов фотоионизации (см. [6–10] и ссылки в них). Соответствующие времена называются временами задержки EWS, так отмечая фамилии авторов Eisenbud [2], Wigner [4] и Smith [5], соответственно.

Как показано в [2–5], времена задержки есть четко определенные величины, которые характеризуют физический процесс, однако только в том случае, когда вылетающие частицы взаимодействуют посред-

¹⁾e-mail: amusia@vms.huji.ac.il

²⁾В статье используется атомная система единиц $e = m = \hbar = 1$, где e – заряд электрона, m – его масса, \hbar – постоянная Планка.

ством сил короткого радиуса. При фотоионизации атома уходящий электрон взаимодействует с остаточным ионом кулоновским потенциалом бесконечного радиуса, что делает невозможным точное определение фаз рассеяния при любой энергии уходящего электрона $\varepsilon > 0$. Это заставило рассчитывать времена задержки при фотоионизации, начиная с не слишком малых значений энергий ε [7, 11]. Вот почему в этом Письме мы рассматриваем наряду с нейтральными мишенями, А и А@C_N, также отрицательные ионы, которые имеют ту же электронную конфигурацию, что и А, А⁻ и А⁻@C_N, для которых остаточный ион является нейтральным. В конкретных расчетах мы выбрали пары Ag, Cl⁻ и Xe, I⁻. В качестве C_N взят почти идеально сферически-симметричный, хорошо изученный и достаточно хорошо моделируемый эндоэдрал C₆₀ [12].

Время задержки фотоэлектрона, испускаемого под заданным углом θ при малой ω , определяется интерференцией электронных волн, излучаемых в заданном направлении при поглощении фотона, который включает дипольные и квадрупольные члены. Мы будем учитывать межэлектронные корреляции электронов в А (А⁻) и действие C₆₀ на А (А⁻), а также действие C₆₀ на выходящий электрон. Все это будет сделано в рамках приближения случайных фаз с обменом (РРАЕ), как и в [13, 14], с заменой C₆₀ статическим потенциалом и добавлением к нему учета поляризации электронной оболочки C₆₀ налетающим пучком фотонов.

2. Временное описание фотоионизации сосредоточено на определении времени задержки электрона, покидающего мишень в заданном направлении после поглощения фотона. Как показано в [2–5], время задержки τ физического процесса как функция его энергии ε связано с фазой амплитуды f рассматриваемого процесса следующим соотношением

$$\begin{aligned} \tau(\varepsilon) &= \frac{d}{d\varepsilon} \arg f(\varepsilon) = \frac{d}{d\varepsilon} \arctan \frac{\operatorname{Im} f(\varepsilon)}{\operatorname{Re} f(\varepsilon)} \equiv \\ &\equiv \operatorname{Im} \left[\frac{1}{f(\varepsilon)} \frac{df(\varepsilon)}{d\varepsilon} \right]. \end{aligned} \quad (1)$$

Оператор фотон-электронного взаимодействия с недипольными поправками низшего порядка по параметру ω/c представляется в так называемой форме “длины” следующим выражением [14]:

$$\hat{M}_{\kappa}^r = \hat{d}_{\kappa}^r + \hat{q}_{\kappa}^{\nabla} \equiv \omega[(\mathbf{e}\mathbf{r}) + i(\boldsymbol{\kappa}\mathbf{r})(\mathbf{e}\mathbf{r})]. \quad (2)$$

Здесь \mathbf{e} – вектор поляризации фотона, $\boldsymbol{\kappa}$ – его импульс, $|\boldsymbol{\kappa}| = \omega/c$. Для линейно поляризованного света имеем

$$\hat{M}_{\kappa}^r = r \left[P_1(\cos \theta) + i \frac{\omega}{c} r P_2(\cos \theta) \right]. \quad (3)$$

В одноэлектронном приближении Хартри–Фока (HF) амплитуда фотоионизации $f^{\text{HF}}(\mathbf{k})$ определяется матричным элементом $\langle \psi_{\mathbf{k}}^{(-)} | \hat{M}_{\kappa}^r | \phi_i \rangle$, который описывает переход атомного электрона из начального состояния i с волновой функцией $\phi_i(\mathbf{r}) = R_{n_i l_i}(r) Y_{l_i m_i}(\hat{\mathbf{r}})$ в состояние непрерывного спектра электрона с импульсом \mathbf{k} после поглощения линейно поляризованного фотона. В этом случае вектор поляризации направлен вдоль оси z и $z = \sqrt{4\pi/3} r Y_{10}(\hat{\mathbf{r}})^3$ [7, 15]. Таким образом, в приближении HF $f(\omega) \Rightarrow f_{n_i l_i}^{\text{HF}}(\varepsilon, \hat{\mathbf{k}})$ определяется следующей формулой, аналогичной (2) в [11], но дополненной другим, именно квадрупольным, приведенным радиальным матричным элементом:

$$\begin{aligned} f_{n_i l_i}^{\text{HF}}(\varepsilon, \hat{\mathbf{k}}) &= \frac{(2\pi)^{3/2}}{k^{1/2}} \times \\ &\times \left[\sum_{l=l_i \pm 1} e^{i[\delta_l(\varepsilon) - l\pi/2]} Y_{l m_i}(\hat{\mathbf{k}}) \begin{pmatrix} l & 1 & l_i \\ -m_i & 0 & m_i \end{pmatrix} \times \right. \\ &\times \langle \varepsilon l \| r \| n_i l_i \rangle + \frac{\omega}{c} \sum_{l'=l_i \pm 2, 0} e^{i[\delta_{l'}(\varepsilon) - l'\pi/2 + \pi/2]} Y_{l' m}(\hat{\mathbf{k}}) \times \\ &\times \left. \begin{pmatrix} l' & 2 & l_i \\ -m_i & 0 & m_i \end{pmatrix} \langle \varepsilon l' \| r^2 \| n_i l_i \rangle \right]. \end{aligned} \quad (4)$$

Здесь $\varepsilon = k^2/2$, l, l' обозначают угловой момент вылетающего фотоэлектрона, а $n_i l_i$ – главное квантовое число и угловой момент ионизируемого электрона. Радиальные волновые функции непрерывного спектра нормированы в энергетической шкале согласно соотношению $\langle \varepsilon l | \varepsilon' l \rangle = \delta(\varepsilon - \varepsilon')$, а их асимптотика дается следующей формулой [16]

$$R_{\varepsilon l}(r) \Big|_{r \rightarrow \infty} = \sqrt{\frac{2}{\pi k}} \frac{1}{r} \sin \left(kr - \frac{l\pi}{2} + \delta_l \right). \quad (5)$$

Здесь $\delta_l \equiv \delta_l(\varepsilon)$ – фаза рассеяния электрона в сплошном спектре в приближении HF [13–15].

Обычно при измерениях аттосекундной временной задержки интерес представляет амплитуда направления вперед [7]. В этом случае нужно заменить $Y_{l m}(\hat{\mathbf{k}} = 0)$ на $\sqrt{(2l+1)/4\pi} \delta_{m_0}$. В данном Письме, чтобы лучше отделить недипольный вклад от дипольного, нам также понадобятся амплитуды фотоионизации электрона в направлении назад. Они могут быть получены из (4) заменой $Y_{l m}(\hat{\mathbf{k}} = \pi)$ на $(-1)^l \sqrt{(2l+1)/4\pi} \delta_{m_0}$. Чтобы исследовать угловую зависимость времен задержки при любом θ в простейшем случае, рассмотрим только пример с $m_i = 0$.

³⁾ Знак крышки над вектором, например, в $\hat{\mathbf{r}}$ отмечает единичный вектор в направлении вектора \mathbf{r} .

В этом случае член $Y_{lm_i}(\theta_{\mathbf{k}}, \varphi_{\mathbf{k}})$ должен быть заменен на $\sqrt{(2l+1)/4\pi}P_l(\cos\theta)$.

Как видно из (1), на задержку во времени не влияют общие численные факторы в амплитуде, так как они не изменяют производную от фазового сдвига. Поэтому мы можем определить амплитуду фотоионизации, пренебрегая общими факторами. Итак, для целей определения времен задержки в HF, без учета фактора $2^{1/2}\pi/k^{1/2}$, вместо (4) имеем следующую амплитуду фотоионизации

$$l_{n_i l_i}^{\text{HF}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) \equiv f_{n_i l_i, d}^{\text{HF}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) + f_{n_i l_i, q}^{\text{HF}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) =$$

$$= \left[\sum_{l=l_i \pm 1} e^{i[\delta_l(\varepsilon) - l\pi/2]} P_l(\cos\theta_{\mathbf{k}}) \sqrt{2l+1} \begin{pmatrix} l & 1 & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times \right.$$

$$\times \langle \varepsilon l \| r \| n_i l_i \rangle + \frac{\omega}{c} \sum_{l'=l_i \pm 2, 0} e^{i[\delta_{l'}(\varepsilon) - l'\pi/2 + \pi/2]} \times$$

$$\left. \times P_{l'}(\cos\theta_{\mathbf{k}}) \sqrt{2l'+1} \begin{pmatrix} l' & 2 & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \langle \varepsilon l' \| r^2 \| n_i l_i \rangle \right]. \quad (6)$$

Здесь $\varepsilon = \omega - \varepsilon_i = k^2/2$, а $\delta_l(\varepsilon)$, $\delta_{l'}(\varepsilon)$ – фазы фотоэлектронов в HF приближении. Видно, что при заданном угле дипольная (первый член) и квадрупольная (второй член) амплитуды в (6) интерферируют, что приводит к разным временам задержки при разных углах θ .

Чтобы получить амплитуды фотоионизации, учитывая межэлектронные корреляции в RPAE, необходимо заменить в (6) матричные элементы $\langle \varepsilon l \| r \| n_i l_i \rangle$ и $\langle \varepsilon l' \| r^2 \| n_i l_i \rangle$ на $\langle \varepsilon l \| D(\omega) \| n_i l_i \rangle$ и $\langle \varepsilon l' \| Q(\omega) \| n_i l_i \rangle$, соответственно. Последние определяются двумя уравнениями [13, 14]:

$$\langle \varepsilon l \| D(\omega) \| n_i l_i \rangle = \langle \varepsilon l \| r \| n_i l_i \rangle +$$

$$+ \frac{1}{3} \sum_{n_j l_j} \int_0^\infty d\varepsilon' \left[\frac{\langle \varepsilon' l' \| D(\omega) \| n_j l_j \rangle \langle n_j l_j, \varepsilon l \| U \| \varepsilon' l', n_i l_i \rangle}{\omega - \varepsilon' + \varepsilon_{n_i l_i} + i\eta} + \right.$$

$$\left. + \frac{\langle n_j l_j \| D(\omega) \| \varepsilon' l' \rangle \langle \varepsilon' l', \varepsilon l \| U \| n_j l_j, n_i l_i \rangle}{\omega + \varepsilon' - \varepsilon_{n_i l_i}} \right], \quad \eta \rightarrow +0 \quad (7)$$

и

$$\langle \varepsilon l' \| Q(\omega) \| n_i l_i \rangle = \langle \varepsilon l' \| r^2 \| n_i l_i \rangle +$$

$$+ \frac{1}{5} \sum_{n_j l_j} \int_0^\infty d\varepsilon' \left[\frac{\langle \varepsilon'' l'' \| Q(\omega) \| n_j l_j \rangle \langle n_j l_j, \varepsilon l' \| U \| \varepsilon'' l'', n_i l_i \rangle}{\omega - \varepsilon'' + \varepsilon_{n_i l_i} + i\eta} + \right.$$

$$\left. + \frac{\langle n_j l_j \| Q(\omega) \| \varepsilon'' l'' \rangle \langle \varepsilon'' l'', \varepsilon l' \| U \| n_j l_j, n_i l_i \rangle}{\omega + \varepsilon'' - \varepsilon_{n_i l_i}} \right], \quad \eta \rightarrow +0. \quad (8)$$

В формулах (7) и (8) суммирование по $n_j l_j$ включает все занятые электронные подоболочки атома, а суммирование по $n' l' (n'' l'')$ включает наряду с дискретными вакантными возбужденными состояниями также интегрирование по непрерывному спектру одноэлектронных возбуждений. Здесь матричные элементы U представляют собой комбинации прямого и обменного кулоновского межэлектронного взаимодействия $V = 1/|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|$. Более подробную информацию о решении (7), (8) и соответствующих вычислительных программах можно найти в [14].

Таким образом, с помощью (7) и (8) амплитуда RPAE определяется следующим соотношением:

$$f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) \equiv f_{n_i l_i, d}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) + f_{n_i l_i, q}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) =$$

$$= \left[\sum_{l=l_i \pm 1} e^{i[\delta_l(\varepsilon) - l\pi/2]} P_l(\cos\theta_{\mathbf{k}}) \sqrt{2l+1} \begin{pmatrix} l & 1 & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \times \right.$$

$$\times \langle \varepsilon l \| D(\omega) \| n_i l_i \rangle + \frac{\omega}{c} \sum_{l'=l_i \pm 2, 0} e^{i[\delta_{l'}(\varepsilon) - l'\pi/2 + \pi/2]} \times$$

$$\left. \times P_{l'}(\cos\theta_{\mathbf{k}}) \sqrt{2l'+1} \begin{pmatrix} l' & 2 & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \langle \varepsilon l' \| Q(\omega) \| n_i l_i \rangle \right]. \quad (9)$$

При вычислении $\arg f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})$ мы должны учесть вклады первых членов в квадратных скобках в (7), (8) от сингулярностей, определяемые соотношением $\eta \rightarrow +0$. Поскольку $\text{Re} \langle \varepsilon l \| D(\omega) \| n_i l_i \rangle$ и $\text{Re} \langle \varepsilon l' \| Q(\omega) \| n_i l_i \rangle$ как функции ω меняют знак, проходя таким образом через нуль, фазы $\arg f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})$ скачком переходят от $\pi/2$ к $-\pi/2$ в соответствующих точках ω и ε . Эти скачки значительно усложняют числовые вычисления. Но в этих точках производная $d[\arg f(\varepsilon)]/d\varepsilon$, которая входит в определение времен задержки (1), есть гладкая функция ε . Поэтому вместо (1) мы используем в RPAE эквивалентную формулу:

$$\tau_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) = \frac{[d \text{Im} f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})/d\varepsilon] \text{Re} f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) - [d \text{Re} f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})/d\varepsilon] \text{Im} f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})}{[\text{Re} f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})]^2 + [\text{Im} f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})]^2}. \quad (10)$$

3. Чтобы исследовать времена задержки вылета фотоэлектронов из эндоэдралов $A@C_N$, мы заменяем C_{60} статическим потенциалом $W(r)$, который соответствует разумному распределению электрических зарядов, и удовлетворительно воспроизводит экспериментальное значение сродства s -электронов в C_{60}^- , как это было сделано недавно в [17]. Потенциал $W(r)$ добавляется к потенциалу атома A в HF. Мы называем соответствующий подход HF_C и RPAE_C. Добавление $W(r)$ влияет на матричные элементы и фазы в HF_C и RPAE_C. Выбран потенциал C_{60} такой же, как в [18], а именно,

$$W(r) = -W_{\max} d^2 / [(r - R)^2 + d^2]. \quad (11)$$

В дополнение к статическому потенциалу $W(r)$ важно учитывать поляризацию фуллереновой оболочки, которая существенно изменяет действие падающего светового луча на ионизуемый внутренний атом A . Предполагая для простоты, что атомный радиус r_a много меньше радиуса фуллера R , в рамках RPAE эффект дипольной и квадрупольной поляризации можно выразить множителями $G_{C_N}^d(\omega)$ и $G_{C_N}^q(\omega)$, что позволяет связать амплитуду фотоионизации эндоэдрала в "атомном" RPAE $f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}_C}(\varepsilon)$ с амплитудой фотоионизации эндоэдрала с учетом поляризационных факторов $G_{C_N}^d(\omega)$ и $G_{C_N}^q(\omega) - f_{n_i l_i}^{A@C_N}(\varepsilon)$ простым соотношением

$$f_{n_i l_i}^{A@C_N}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) = G_{C_N}^d(\omega) f_{n_i l_i, d}^{\text{RPAE}_{C_N}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) + G_{C_N}^q(\omega) f_{n_i l_i, q}^{\text{RPAE}_{C_N}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}). \quad (12)$$

Дипольный $G_{C_N}^d(\omega)$ и квадрупольный $G_{C_N}^q(\omega)$ поляризационные факторы выражаются через дипольную $\alpha_C^d(\omega)$ и квадрупольную $\alpha_C^q(\omega)$ динамические поляризуемости C_{60} [13, 14]:

$$G_{C_N}^d(\omega) \simeq [1 - \alpha_C^d(\omega)/R^3], \quad G_{C_N}^q(\omega) \simeq [1 - \alpha_C^q(\omega)/4R^5]. \quad (13)$$

Дипольная поляризуемость хорошо известна и определяется полным сечением фотоионизации $\sigma(\omega)$ C_N (см., например, [13]), которое можно измерить и ограничить так называемым дипольным правилом сумм. Что касается $\alpha_C^q(\omega)$, то нет экспериментальных данных, которые могли бы помочь определить эту величину. Пока доступны лишь оценки. Используя (9), (12) и (13), получаем следующее выражение для эндоэдральной амплитуды с недипольными поправками $f_{n_i l_i}^{A@C_N}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})$:

$$f_{n_i l_i}^{A@C_N}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) \equiv f_{n_i l_i, d}^{A@C_N}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) + f_{n_i l_i, q}^{A@C_N}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) = \left[G_{C_N}^d(\omega) \sum_{l=l_i \pm 1} e^{i[\delta_l^C(\varepsilon) - l\pi/2]} P_l(\cos \theta_{\mathbf{k}}) \times \right.$$

$$\times \sqrt{2l+1} \begin{pmatrix} l & 1 & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \langle \varepsilon l \| D(\omega) \| n_i l_i \rangle + \frac{\omega}{c} G_{C_N}^q(\omega) \times \\ \times \sum_{l'=l_i \pm 2, 0} e^{i[\delta_{l'}^C(\varepsilon) - l'\pi/2 + \pi/2]} P_{l'}(\cos \theta_{\mathbf{k}}) \times \\ \times \sqrt{2l'+1} \begin{pmatrix} l' & 2 & l_i \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \langle \varepsilon l' \| Q(\omega) \| n_i l_i \rangle \Big]. \quad (14)$$

Заметим, что фазы $\delta_l^C(\varepsilon)$ определены в приближении HF_C. Времена задержки для эндоэдралов $\tau_{n_i l_i}^{A@C_N}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})$ определяются формулой, аналогичной (10), где $f_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})$ заменяется на $f_{n_i l_i}^{A@C_N}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})$.

В исследованиях низкоэнергетической фотоионизации параметр, характеризующий вклад квадрупольного члена по сравнению с дипольным $\omega r_A/c$, мал даже при $(\omega r_A/c) \ll 1$. Однако недипольные члены относительно легко наблюдаются в районе минимумов Купера, интерференционных минимумов дипольной амплитуды [13] или в случаях, когда, например, из-за резонанса квадрупольные члены необычно велики.

Для субвалентных n_s -подоболочек атомов благородных газов дипольные матричные элементы аномально подавлены, а квадрупольные члены усилены [13]. То же самое в значительной степени справедливо для субвалентных подоболочек в эндоэдралах благородных газов. Вот почему особый интерес представляют s -подоболочки. Для s -ионизируемых электронов, т.е. для $l_i = 0$, имеем из (9) и (14), исключая общий в обоих членах, не изменяющий времени задержки множитель i , следующие формулы

$$f_{n_i 0}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) = e^{i\tilde{\delta}_1} \cos \theta_{\mathbf{k}} \tilde{D}_1 - \sqrt{2} \frac{\omega}{c} e^{i\tilde{\delta}_2} P_2(\cos \theta_{\mathbf{k}}) \tilde{Q}_2, \\ f_{n_i 0}^{A@C_N}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) = \quad (15)$$

$$G^d e^{i\tilde{\delta}_1} \cos \theta_{\mathbf{k}} \tilde{D}_1 - \sqrt{2} \frac{\omega}{c} G^q e^{i\tilde{\delta}_2} P_2(\cos \theta_{\mathbf{k}}) \tilde{Q}_2.$$

Здесь $\langle \varepsilon 1 \| D(\omega) \| n_i 0_i \rangle \equiv \tilde{D}_1 \exp[i\Delta_1(\varepsilon)]$, $\tilde{\delta}_1 \equiv \delta_1(\varepsilon) + \Delta_1(\varepsilon)$, $\langle \varepsilon 2 \| Q(\omega) \| n_i 0_i \rangle \equiv \tilde{Q}_2 \exp[i\Delta_2(\varepsilon)]$ и $\tilde{\delta}_2 \equiv \delta_2(\varepsilon) + \Delta_2(\varepsilon)$.

Время задержки для s -подоболочек в RPAE особенно просто выражается для $\omega/c \ll \cos \theta_{\mathbf{k}}$, где оно определяется формулой:

$$\tau_{n_i 0}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) \approx \tilde{\delta}'_1 - \frac{\sqrt{2}}{c} \frac{P_2(\cos \theta_{\mathbf{k}})}{\cos \theta_{\mathbf{k}}} \left[\frac{\tilde{Q}_2}{\tilde{D}_1} + \omega \left(\frac{\tilde{Q}_2}{\tilde{D}_1} \right)' \right] \times \\ \times \sin(\tilde{\delta}_2 - \tilde{\delta}_1) + \omega \frac{\tilde{Q}_2}{\tilde{D}_1} (\tilde{\delta}'_2 - \tilde{\delta}'_1) \cos(\tilde{\delta}_2 - \tilde{\delta}_1). \quad (16)$$

Чтобы сравнить недипольные члены для $\tau_{n_i0}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})$ с членами для сечения $\sigma_{n0}(\omega)$, представим соответствующую формулу для $d\sigma_{n0}(\omega, \theta_{\mathbf{k}})/d\Omega$ из [13]:

$$\frac{d\sigma_{n0}(\omega, \theta_{\mathbf{k}})}{d\Omega} \approx \quad (17)$$

$$\approx \frac{3\sigma_{n0}(\omega)}{8\pi} \sin^2 \theta_{\mathbf{k}} \left[1 + 4 \frac{\omega}{c} \frac{\tilde{Q}_2}{\tilde{D}_1} \cos(\tilde{\delta}_2 - \tilde{\delta}_1) \cos \theta_{\mathbf{k}} \right].$$

Чтобы получить выражения, подобные (15)–(17), но для эндоэдралов, необходимо заменить \tilde{Q}_2 , \tilde{D}_1 , $\tilde{\delta}_2$, и $\tilde{\delta}_1$ на $\tilde{Q}_2 = \tilde{G}^q \tilde{Q}_2$, $\tilde{D}_1 = \tilde{G}^d \tilde{D}_1$, $\tilde{\delta}_2^C = \tilde{\delta}_2^C + \Delta^q$ и $\tilde{\delta}_1^C = \tilde{\delta}_1^C + \Delta^p$, где используются обозначения $\tilde{G}^{d,q} \exp(i\Delta^{d,q}) \equiv G_{\text{CN}}^{d,q}(\omega)$.

Согласно (15), измеряя время задержки при $\theta_{\mathbf{k}} = \pi/2$, можно напрямую найти недипольный вклад, поскольку дипольный член в (15) равен нулю. Однако согласно (17) сечение рассеяния под этим углом равно нулю. Существенно, что квадрупольный член входит в выражения для времени задержки и сечения фотоионизации в различных комбинациях.

Важно отметить, что при переходе от угла наблюдения $\theta_{\mathbf{k}}$ к углу $\theta_{\mathbf{k}} + \pi$, например, от направления вперед к направлению назад, дипольный вклад во время задержки не меняет своего знака, тогда как квадрупольный вклад меняет. Таким образом, измеряя разницу $\Delta\tau_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) \equiv \tau_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) - \tau_{n_i l_i}^{\text{RPAE}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}} + \pi)$ или $\Delta\tau_{n_i l_i}^{\text{A@CN}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) \equiv \tau_{n_i l_i}^{\text{A@CN}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}}) - \tau_{n_i l_i}^{\text{A@CN}}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}} + \pi)$, можно получить величины, прямо пропорциональные ω/c .

Конкретные аналитические выражения для разницы во времени $l_i > 0$ слишком громоздки, чтобы приводить их здесь. Вместо этого мы представим непосредственно численные результаты для разницы во временах задержки. Заметим, что разница между $d\sigma_{n_i l_i}(\varepsilon, \theta_{\mathbf{k}})/d\Omega$ при $\theta_{\mathbf{k}}$ и $\theta_{\mathbf{k}} + \pi$ также пропорциональна $1/c$, что проиллюстрировано для *s*-подоболочки в (17).

Из (9), (14), (15) и (17) видно, что квадрупольный член содержит новую информацию о процессе фотоионизации: включает другую амплитуду фотоионизации и фактор поляризации, другие разности фаз рассеяния. Существенно, что эти характеристики проявляются в комбинациях, отличных от тех, что входят в недипольные поправки к угловому распределению фотоэлектронов (см. (17)) [13]. Поэтому результаты, которые могут быть получены из исследований недипольных поправок к задержкам во времени, являются дополнительными к результатам, полученным из угловых распределений.

4. Мы провели конкретные расчеты для многоэлектронных атомов Ar, Xe, изоэлектронных им от-

рицательных ионов Cl^- , I^- и соответствующих эндоэдралов, состоящих из оболочки фуллерена C_{60} с одним из атомов/ионов внутри: Ar, Cl^- , Xe, $\text{I}^- @ \text{C}_{60}$. Мы рассмотрели внешние *p*- и субвалентные *s*-подоболочки во всех изученных объектах, наряду с подоболочкой *4d* в Xe и I^- , а также в их эндоэдралах.

Мы сконцентрируемся здесь на получении данных о недипольных вкладах. Расчеты производятся в RPAE_C . Параметры потенциала (11) такие же, как и в наших недавних работах, например, в [11]. Учет поляризации оболочки фуллеренов в рамках RPAE достигается использованием *G*-факторов (13), параметры которых такие же, как в [11]. Результаты для эндоэдралов отмечены верхними индексами A@C.

В расчетах определялись только HF фазы рассеяния $\delta_l(\varepsilon)$ (9) и (14). Эти фазы хорошо определены только для короткодействующих потенциалов. Так обстоит дело с фотоионизацией отрицательных ионов и соответствующих эндоэдралов. Для нейтральных атомов и их эндоэдралов вылетающий электрон ощущает поле однозарядного иона. В результате само понятие фазового сдвига теряет смысл. Пробные расчеты показывают, что для рассматриваемых объектов это имеет место при $\varepsilon < 0.1 \text{ Ry}$. Для отрицательных ионов время задержки хорошо определено при любой энергии.

Используя (10), мы вычисляем RPAE_C и, после соответствующей подстановки амплитуд A@C, и время задержки электронов, летящих вперед и назад, т.е. при углах вылета фотоэлектрона $\theta_{\mathbf{k}} = 0$ и $\theta_{\mathbf{k}} = \pi$. Эти времена обозначены на рис. 1–4 как fw и bw соответственно. Главный наш результат в данном Письме – разница во временах задержки вперед и назад, которая пропорциональна ω/c . На этих рисунках она изображена на вставках. Энергия фотона выражается в ридбергах (Ry, $1 \text{ Ry} = 13.6 \text{ эВ}$), а время задержки – в аттосекундах (as, $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ с}$). Мы не приводим здесь результаты расчетов в HF, так как известно, что для рассматриваемых объектов роль поправок RPAE велика [13].

Каждый рисунок включает для данной подоболочки результаты для атома, изоэлектронного отрицательного иона и соответствующих эндоэдралов. Большие отрицательные значения времен задержки противоречат принципу причинности и, как таковые, должны быть отброшены. Однако не слишком большие отрицательные значения совместимы с причинностью из-за квантовой природы процесса фотоионизации (см. [4]). Времена задержки вперед и назад довольно велики, и достигают сотен аттосекунд. Соответствующая разница во времени вперед-назад в Ar характеризуется сильным максимумом, весьма

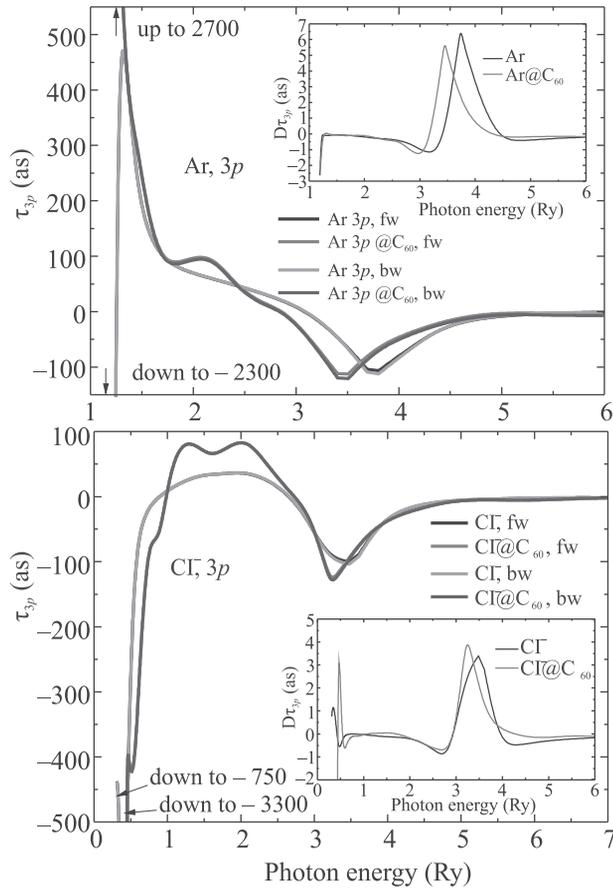


Рис. 1. (Цветной онлайн) Времена задержки фотоэлектронов из $3p$ -подоболочки Ar, Cl^- и эндоедралов $\text{Ar}@C_{60}$ и $\text{Cl}^-@C_{60}$, испускаемых вперед (fw) и назад (bw), и их разности $\Delta\tau_{3p}(\varepsilon) \equiv \tau_{3p}(\varepsilon, 0) - \tau_{3p}(\varepsilon, \pi)$ (вставка), определяемые недипольным вкладом

заметным для $3p$ -подоболочки (см. рис. 1) и особенно большим для $3s$ -подоболочки в Ar и $\text{Ar}@C_{60}$ (см. рис. 2). Влияние оболочки эндоедрала на времена задержки и соответствующие недипольные поправки заметно для Cl^- , высокий максимум для Cl^- превращается для $\text{Cl}^-@C_{60}$ в глубокий минимум (см. рис. 2, вставка). Сильное изменение в $\Delta\tau_{3s}(\varepsilon)$ является следствием малости амплитуд дипольной фотоионизации и большого влияния на них квадрупольного перехода [1, 13]. Поведение времени задержки для $3p$ -электронов следует зависимости $3p$ -дипольной амплитуды от ω и определяется ее полным доминированием над вкладом квадрупольного перехода.

Мы не приводим результаты для $5p$ -фотоэлектронов в Xe и I^- , а также для соответствующих эндоедралов, так как там ситуация качественно аналогична $3p$ на рис. 1, и из-за нехватки места. На рисунке 3 представлены результаты для $5s$ -фотоэлектронов. На $5s$ -амплитуду фотоионизации рассматри-

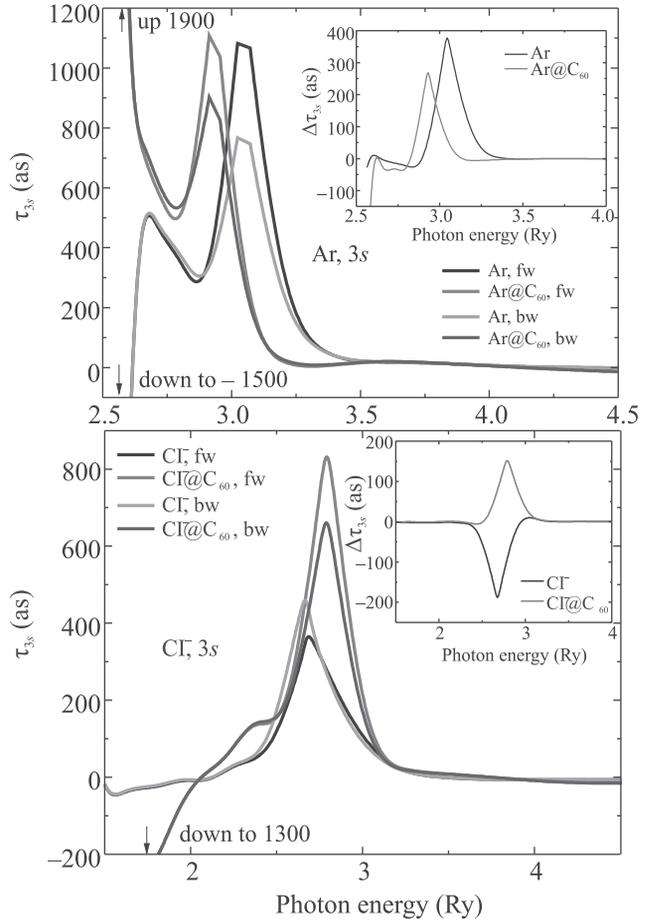


Рис. 2. (Цветной онлайн) Времена задержки фотоэлектронов из $3s$ -подоболочки Ar, Cl^- и эндоедралов $\text{Ar}@C_{60}$ и $\text{Cl}^-@C_{60}$, испускаемых вперед (fw) и назад (bw), и их разности $\Delta\tau_{3s}(\varepsilon) \equiv \tau_{3s}(\varepsilon, 0) - \tau_{3s}(\varepsilon, \pi)$ (вставка), определяемые недипольными вкладами

ваемых объектов сильно влияют не только внешние $5p$ -электроны, но и электроны промежуточной $4d$ -подоболочки. Хорошо известной особенностью $4d$ является ее дипольный Гигантский резонанс, который доминирует в сечении фотоионизации в широкой ω области – примерно от 4 до 10 Ry. Однако для времен задержки $5s$ оказался важен только максимум, который отражает влияние $5p$ на $5s$. Как ни странно, существуют лишь небольшие следы Гигантского резонанса. Максимумы на вставках рис. 3 отражают влияние того факта, что сечение дипольной фотоионизации около 11 Ry имеет минимум Купера [13]. На рисунке 4 показаны результаты для $4d$ -подоболочки. Что касается $5s$, то представляет интерес околопороговое поведение, которое дает совершенно разные результаты для Xe и I^- . Никаких существенных следов Гигантского резонанса не наблюдается. Однако в области минимума Купера в сечении фотоионизации

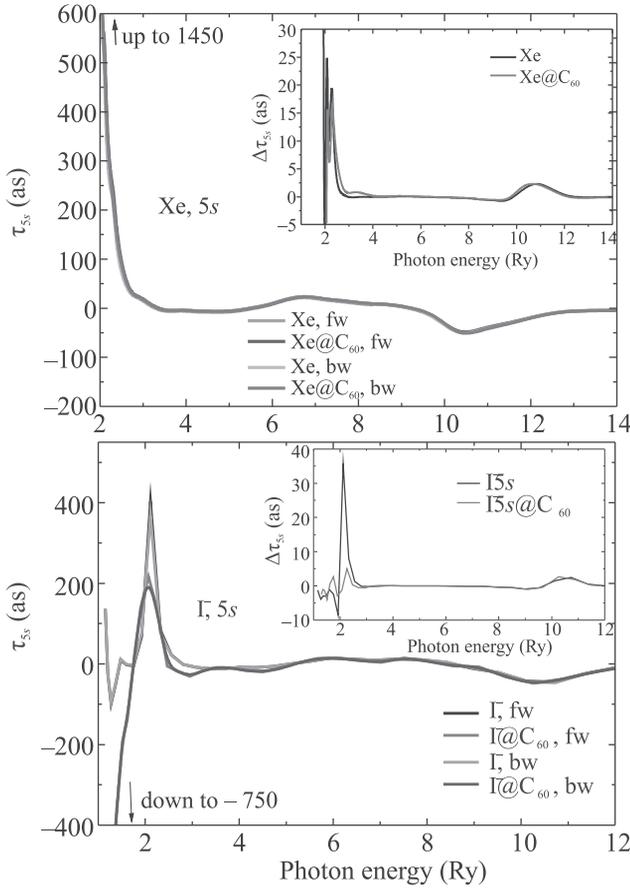


Рис. 3. (Цветной онлайн) Времена задержки фотоэлектронов из 5s-подоболочки Xe, I⁻ и эндоэдралов Xe@C₆₀ и I⁻@C₆₀, испускаемых вперед (fw) и назад (bw), и их разности $\Delta\tau_{5s}(\varepsilon) \equiv \tau_{5s}(\varepsilon, 0) - \tau_{5s}(\varepsilon, \pi)$ (вставки), определяемые недипольными вкладами

ции мы видим заметный минимум времен задержки. Разница во времени для Xe и I⁻ имеет замечательную вариацию формы типа профиля Фано, которая, однако, не соответствует дискретному уровню. Вместо этого есть след изменения дипольного сечения фотоионизации. Поляризационные факторы влияют в основном на внешнюю подоболочку, и приводят к довольно плавному добавлению к времени задержки около порогов внешних и субвалентных подоболочек в эндоэдралах, соответствующих Ar, Cl⁻, Xe, I⁻. Естественно, что 4d-подоболочка достаточно глубокая, а потому роль оболочки C₆₀, кроме как вблизи порога, для всех времен задержки для нее незначительна.

5. В данном Письме мы исследовали амплитуду фотоионизации при сравнительно низких энергиях фотонов, которая включает наряду с основным дипольным также квадрупольный вклад. Имея такую амплитуду, мы впервые демонстрируем, что квад-

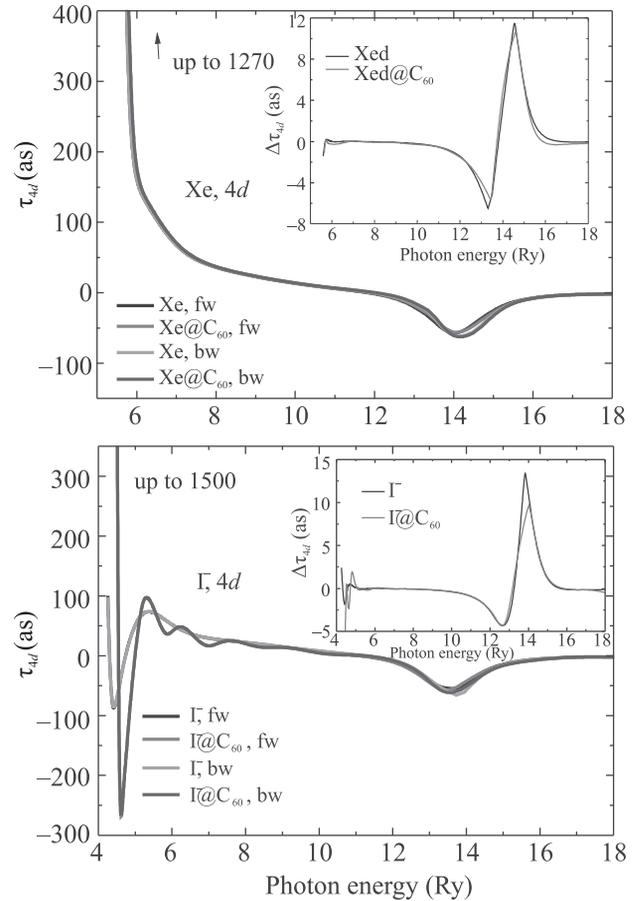


Рис. 4. (Цветной онлайн) Времена задержки фотоэлектронов из 4d-подоболочки Xe, I⁻ и эндоэдралов Xe@C₆₀ и I⁻@C₆₀, испускаемых вперед (fw) и назад (bw), и их разности $\Delta\tau_{4d}(\varepsilon) \equiv \tau_{4d}(\varepsilon, 0) - \tau_{4d}(\varepsilon, \pi)$ (вставки), определяемые недипольными вкладами

рупольные поправки к временам задержки достаточно заметны, и при определенных условиях могут быть изолированы от дипольных вкладов, и измерены. Особый интерес представляет ситуация для 3s-подоболочки в Ar, где разница во временах задержки фотоэлектронов, вылетающих вперед и назад, определяемая квадрупольным вкладом, достигает 400 ас.

Использование аттосекундных лазеров для исследования времен задержки – непростая задача, поскольку извлечение из данных эксперимента времени задержки EWS требует избавления от добавок, вносимых свойствами лазерного луча, включая неопределенность в энергии налетающих фотонов (см., например, [11, 19]).

Несмотря на трудности, теоретическое исследование разностей времен задержки и их экспериментальное измерение представляет интерес как возможный источник уникальной информации об ионизируемых мишенях.

1. M. Ya. Amusia, P. U. Arifov, A. S. Baltentkov, A. A. Grinberg, and S. G. Shapiro, *Phys. Lett. A* **47**(1), 66 (1974).
2. L. E. Eisenbud, *Ph. D. thesis*, Princeton University, Princeton (1948).
3. D. Bohm, *Quantum theory*, Prentice-Hall, N.Y. (1952), ch. 11.
4. E. P. Wigner, *Phys. Rev.* **98**, 145 (1955).
5. F. T. Smith, *Phys. Rev.* **118**, 349 (1960).
6. A. S. Kheifets and I. A. Ivanov, *Phys. Rev. Lett.* **105**, 233002 (2010).
7. A. S. Kheifets, *Phys. Rev. A* **87**, 063404 (2013).
8. P. C. Deshmukh, A. Mandal, S. Saha, A. S. Kheifets, V. K. Dolmatov, and S. T. Manson, *Phys. Rev. A* **89**, 053424 (2014).
9. R. Pazourek, S. Nagele, and J. Burgdörfer, *Rev. Mod. Phys.* **87**, 765 (2015).
10. P. Hockett, E. Frumker, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *J. Phys. B* **49**, 095602 (2016).
11. M. Ya. Amusia and L. V. Chernysheva, *JETP Lett.* **112**(4), 219 (2020) [*Pis'ma v ZhETF* **112**(4), 233 (2020)].
12. V. K. Dolmatov, in *Theory of Confined Quantum Systems: Part Two*, ed. by J. R. Sabin and E. Brandas, v. 58 of *Advances in Quantum Chemistry*, Academic Press, N.Y. (2009), p. 13.
13. M. Ya. Amusia, L. V. Chernysheva, and V. G. Yarzhemsky, *Handbook of Theoretical Atomic Physics, Data for Photon Absorption, Electron Scattering, and Vacancies Dwecay*, Springer, Berlin (2012), p. 812.
14. М. Я. Амусья, С. К. Семенов, Л. В. Чернышева, *АТОМ-М. Алгоритмы и программы для исследования атомных и молекулярных процессов*, Наука, СПб. (2016), 551 с.
15. M. Ya. Amusia, *Atomic Photoeffect*, Plenum Press, N.Y.–London (1990), 303 p.
16. L. D. Landau and E. M. Lifshitz, *Quantum Mechanics: Non-Relativistic Theory*, 3rd ed., Pergamon Press, N.Y. (1977).
17. M. Ya. Amusia and L. V. Chernysheva, *JETP Lett.* **109**(6), 345 (2019) [*Pis'ma v ZhETF* **109**(6), 355 (2019)].
18. A. S. Baltentkov, S. T. Manson, and A. Z. Msezane, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* **48**, 185103 (2015).
19. M. Isinger, R. J. Scuibb, D. Busto, S. Zhong, A. Harth, D. Kroon, S. Nandi, C. L. Arnold, and M. Miranda, *Science* **358**, 893 (2017).

Поправка

В статье Волков М.К. и др., “Процессы $\tau^- \rightarrow \pi^- \pi^0 \nu_\tau$ и $e^+ e^- \rightarrow \pi^+ \pi^-$ в киральной модели НИЛ с учетом взаимодействия пионов в конечном состоянии”, опубликованной в томе 112, вып. 8, с. 493 (2020), в формуле (8) на с. 495 допущена ошибка, эта формула должна читаться

$$ig_\rho^3 \left[\frac{I_{1M}}{M_\rho^2} + I_{2M} \right] (p_+ - p_-)^\mu.$$

Соответственно, третья строка в формуле (10) на с. 495 и вторая строка в формуле (11) на с. 496 изменяются на

$$\times \left\{ 1 + g_\rho^2 \left[\frac{I_{1M}}{M_\rho^2} + I_{2M} \right] \right\} \times.$$

Исправление данной ошибки влечет за собой незначительное изменение численных результатов. А именно, значение параметра обрезания по мезонной петле (с. 495, правая колонка, строка 10 снизу) меняется на $\Lambda_M = 740$ МэВ. Численное значение парциальной ширины распада в формуле (12) на с. 497 меняется на

$$\text{Br}(\tau \rightarrow \pi\pi\nu) = (25.1 \pm 1.2) \%$$

График зависимости сечения от энергии (рис. 5 на с. 496) принимает вид

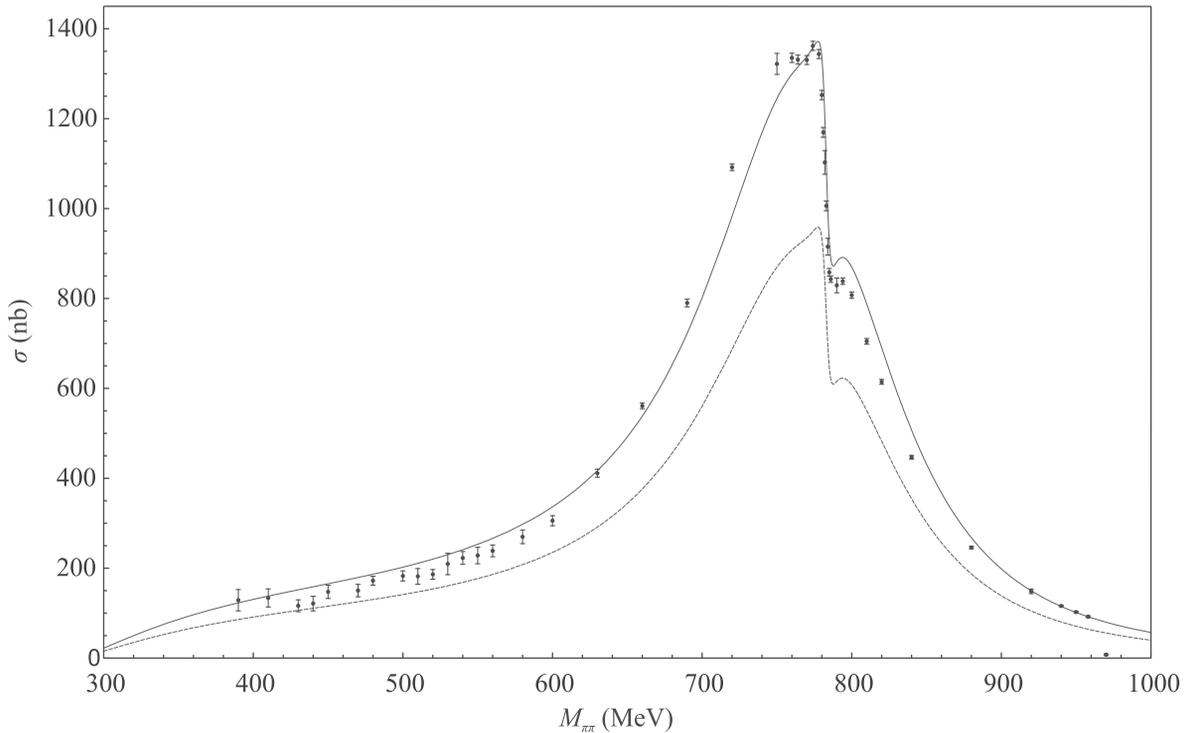


Рис. 5. (Цветной онлайн) Сечение процесса $e^+ e^- \rightarrow \pi^+ \pi^-$ в зависимости от энергии в системе центра масс. Экспериментальные точки взяты из работы [21]. Пунктирная кривая получена без вклада взаимодействий в конечном состоянии, а сплошная с его учетом

Содержание
Том 112, выпуск 9
Оптика, лазерная физика

Кудряшов С.И., Левченко А.О., Данилов П.А., Смирнов Н.А., Рупасов А.Е., Хмельницкий Р.А., Ковальчук О.Е., Ионин А.А. Тонкая структура спектра фотолюминесценции в алмазе при многократной эмиссии оптического фонона в ходе автолокализации фотовозбужденных электронов 579

Крюкова И.С., Кривенков В.А., Самохвалов П.С., Набиев И.Р. Слабая связь между светом и веществом в фотонных кристаллах на основе пористого кремния приводит к усилению флуоресценции квантовых точек при двухфотонном возбуждении 584

Плазма, гидро- и газодинамика

Прохоров В.Е. Ударное акустическое излучение при столкновении капли изменяющейся формы с поверхностью воды 591

Андреев А.А., Платонов К.Ю. Динамика и излучение релятивистских магнитных диполей лазерной кластерной плазмы 598

Конденсированное состояние

Кулеева Н.А., Кучинский Э.З., Садовский М.В. Разложение Гинзбурга–Ландау и верхнее критическое поле в неупорядоченной модели Хаббарда с притяжением (Миниобзор) 603

Doumi B., Mokaddem A., Tadjer A. Investigation insights into electronic structures, exchange splittings, induced ferromagnetism and half-metallic feature in new Ti-doped BaS 617

Бабиченко В.С., Полищук И.Я. Спинорный Бозе газ частиц малой плотности с произвольным спином 618

Любовский Р.Б., Песоцкий С.И., Зверев В.Н., Жилиева Е.И., Торунова С.А., Любковская Р.Н. Восстановление гидростатическим давлением металлического состояния в квазидвумерном органическом проводнике κ -(ET)₂Hg(SCN)₂Cl 623

Акопян Л.А., Заливако И.В., Лахманский К.Е., Хабарова К.Ю., Колачевский Н.Н. Оптимизация спектра нормальных частот линейных ионных кристаллов в ловушках Пауля для ЕПТ-охлаждения с использованием оптической решетки 626

Волков В.В., Конарев П.В., Крюкова А.Е. Комбинированная схема восстановления функции распределения частиц по размерам с использованием данных малоуглового рассеяния 632

Содержание

Том 112, выпуск 10

Поля, частицы, ядра

- Воронин В.В., Федоров В.В., Шапиро Д.Д.** Ограничения на новое короткодействующее взаимодействие спин-орбитального типа из данных нейтронной дифракции в нецентросимметричном кристалле 639

Оптика, лазерная физика

- Савченков Е.Н., Дубиков А.В., Шараева А.Е., Буримов Н.И., Шандаров С.М., Есин А.А., Ахматханов А.Р., Шур В.Я.** Наблюдение фотоиндуцированной проводимости регулярной доменной структуры с наклонными стенками в $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ на длине волны 632.8 нм при дифракции Брэгга 644

- Акмаев М.А., Кочиев М.В., Дулебо А.И., Пугачев М.В., Кунцевич А.Ю., Белых В.В.** Неэкспоненциальная динамика фотолюминесценции неоднородного экситонного ансамбля в моно-слоях WSe_2 650

- Тонкаев П., Кившарь Ю.** Высокодобротные диэлектрические Ми-резонансные наноструктуры (Мини-обзор) 658

Плазма, гидро- и газодинамика

- Франк А.Г., Сатунин С.Н.** О возбуждении токов обратного направления в токовых слоях 667

Конденсированное состояние

- Гришаков К.С., Дегтяренко Н.Н.** Новая фаза немолекулярного полимерного азота, устойчивая при нулевом давлении 674

- Аплеснин С.С., Масюгин А.Н., Ситников М.Н., Кецко В.А., Смирнова М.Н., Янушкевич К.И.** Магнитоэлектрический эффект в пленках $\text{Ce}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ 680

- Ushakov A. V., Solovyev I.V., Streltsov S.V.** Can the highly symmetric $SU(4)$ spin-orbital model be realized in $\alpha\text{-ZrCl}_3$? 686

- Глазков В.Н.** Антиферромагнитный резонанс в спин-щелевом магнетике с сильной одноионной анизотропией 688

- Сбойчаков А.О., Рожков А.В., Кугель К.И., Рахманов А.Л.** Фазовое расслоение в состоянии с волной спиновой плотности в подкрученном двухслойном графене при магическом угле подкрутки 693

- Shaginyan V.R., Msezane A.Z., Clark J.W., Japaridze G.S., Leevik Y.S.** Universal T/B scaling behavior of heavy fermion compounds (Mini-review) 700

Квантовая информатика

Пополитова Д.В., Тихонова О.В. Квантовое перепутывание и фазовый контроль неклассических электромагнитных полей при взаимодействии с атомными системами 702

Разное

Амусья М.Я., Чернышева Л.В. Недипольные эффекты во временах задержки фотоэлектронов из атомов, отрицательных ионов и эндоэдралов 709

Волков М.К., Арбузов А.Б., Пивоваров А.А. Поправка 717